

T H E S E

présentée à la

FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE STRASBOURG

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Charles BURGGRAF

Attaché de Recherche au C.N.R.S.

Mesure des Intensités des faisceaux électroniques diffractés,
détermination des facteurs de diffusion atomiques, du platine
de l'argent et de l'aluminium.

Soutenue le 3 mai 1969 devant la Commission d'Examen

J U R Y

MM. S. GOLDSZTAUB

Président

H. SAUCIER

Examineur

H. CURIEN

"

P. HAYMANN

"

T H E S E

présentée à la

FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE STRASBOURG

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Charles BURGGRAF

Attaché de Recherche au C.N.R.S.

Mesure des Intensités des faisceaux électroniques diffractés,
détermination des facteurs de diffusion atomiques, du platine
de l'argent et de l'aluminium.

Soutenue le 3 mai 1969 devant la Commission d'Examen

J U R Y

MM. S. GOLDSZTAUB

Président

H. SAUCIER

Examineur

H. CURIEN

"

P. HAYMANN

"



Doyen : Professeur J.H. VIVIENDoyens Honoraires : A.KIRRMANN, P.LACROUTE, H.J.MARESQUELLE, G.MILLOT

Professeurs Honoraires : P. DE BEAUCHAMP, L.BOISSELET, H.CARTAN,
 G.CERF, C.CHABAUTY, A.CHRETIEN, J.DENY, Ch.EHRESMANN, M.FRECHET
 Mle S.GILLET, A.HEE, R.HOCART, A.KIRRMANN, G.LEMEE, P.L'HERITIER,
 A.LICHNEROWICZ, L.NEEL, Ch.SADRON, E.TERROINE, H.VILLAT, H.WEISS,
 Et. WOLFF, J.YVON.

Maître de Conférences Honoraire : R.WEILProfesseurs :

H.J. MARESQUELLE	T.	Biologie végétale
H. FORESTIER	T.	Chimie générale
J. ROTHE	T.	Physique du Globe
P. LACROUTE	T.	Astronomie
J.H. VIVIEN	T.	Zoologie et Embryologie expéri- mentale
A. MAILLARD	T.	Physicochimie du Pétrole
S. GORODETZKY	T.	Physique générale et Physique nucléaire
L. SACKMANN	T.	Mécanique des Fluides
J. BYE	T.	Chimie Physique
R. LOMBARD	T.	Chimie organique
Mle M. PEREY	T.	Chimie nucléaire
S. GOLDSZTAUB	T.	Minéralogie et Pétrographie
P. JOLY	T.	Biologie générale

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41553609_0027

H. BENOIT	T.	Physicochimie macromoléculaire
P. CUER	T.	Physique générale et Physique corpusculaire
G. MILLOT	T.	Géologie et paléontologie
R. LECOLAZET	T.T.P.	Physique du Globe
H. SAUCIER	T.T.P.	Minéralogie
R. ROHMER	T.	Chimie minérale
M ^{lle} A. GAGNIEU	T.T.P.	Botanique
S. NIKITINE	T.	Physique générale
F. STUTINSKY	T.	Physiologie générale
B. WURTZ	T.T.P.	Chimie biologique
J. BRENET	T.	Electrochimie
G. OURISSON	T.T.P.	Chimie
A. COCHE	T.T.P.	Physique nucléaire
R. CERF	T.	Physique générale
J. FRENKEL	T.T.P.	Mathématiques
P. TAGLANG	T.	Physique
J.P. LONCHAMP	T.T.P.	Physique
A. DELUZARCHE	T.T.P.	Chimie
J.B. DONNET	T.T.P.	Chimie Physique
R. ARMBRUSTER	T.T.P.	Physique
A. ROCHE	T.T.P.	Physique du Globe
L. HIRTH	T.	Microbiologie
A. SIGOT	P.S.C.	Zoologie
A. FUCHS	T.	Mécanique rationnelle
A. GALLMANN	T.T.P.	Physique
P. MIALHE	T.T.P.	Physiologie animale
J.P. EBEL	T.	Chimie biologique
J. PARROD	T.T.P.	Chimie

R. WEY	T.T.P.	Chimie
Mme. D. MAGNAC	T.T.P.	Physique
M. DAUNE	P.S.C.	Physique
J.P. ADLOFF	T.T.P.	Chimie nucléaire
D. BERNARD	T.T.P.	Méthodes mathématiques de la physique
E. DANIEL	T.	Physique expérimentale
P. CHEVALIER	T.	Physique
J. GREMILLARD	T.T.P.	Mécanique des Fluides
P. CARTIER	T.	Mathématiques
G. REEB	T.	Topologie
R. CHAUVIN	T.	Psychophysiologie
J. WUCHER	P.S.C.	Physique
Mme. BRINI M.	P.S.C.	Chimie
R. BARO	P.S.C.	Physique
H. DURANTON	P.S.C.	Botanique
R. WEISS	T.T.P.	Chimie
P. FEDERLIN	T.T.P.	Chimie
J. LERAY	P.S.C.	Physique
J.P. SCHWING	P.S.C.	Chimie
M. SIESKIND	P.S.C.	Physique
G. MONSONEGO	T.	Physique théorique
P. GABRIEL	T.T.P.	Mathématiques
C. WIPPLER	T.	Physicochimie des Hauts Polymères industriels
P.A. MEYER	T.T.P.	Mathématiques
G. WEILL	P.S.C.	Physique
J.M. BLOCH	T.	Chimie
A. CLAUSS	P.S.C.	Chimie

E. FOLLENIUS P.S.C. Zoologie
 J. LUCAS P.S.C. Géologie
 J.J. THIEBOLD P.S.C. Biologie animale
 G. GLAESER T. Mathématiques
 J.H. WEIL P.S.C. Chimie biologique
 D. FOATA P.S.C. Mathématiques

Professeurs associés :

A. BANDERET (E.A.H.P.) - R.CLELAND (Physique) - G.PEROLD (Chimie)
 J. SAMPSON (Mathématiques)

Maîtres de Conférences :

H. DANAN Physique
 Mme WINTER Chr. Physique
 J.P. EBERHART Minéralogie
 Mme D. CAGNIANT Chimie
 X. FERNIQUE Mathématiques
 J. STREITH Chimie
 F. GAUTIER Physique propédeutique
 G. SUTTER Physique électronique
 J.M. LEHN Chimie
 Cl. ROBERT Physique
 Fr. LACROUTE Biologie végétale
 A. GIRARDIE Biologie animale
 M. GOUNOT Botanique
 J. DEHAND Chimie minérale
 J. PRADINES Mathématiques
 F. BECKER Physique mathématique
 M. KAROUBI Mathématiques
 A. MIGNOT Mathématiques appliquées
 R. VOLTZ Physique théorique

A. MICHARD Géologie
J.M. GIRAUD Mathématiques
Y. BOULANGER Chimie biologique
D. DACUNHA-CASTELLE Mathématiques
J.P. BRETAGNOLLE Mathématiques
J.J. RIEHL Chimie
C. DELLACHERIE Cl. Mathématiques

Maîtres de Conférences associés :

V. AVANISSIAN (Mathématiques) - J.APSIMON (Chimie) - R. CAIROLI (Mathématiques) - E. DADE (Mathématiques) - H.GOLDWHITE (Chimie) -
G. LETTA (Mathématiques) - G. RINEHART (Mathématiques) -
M. SZYMONA (Chimie biologique)

Secrétaire général de la Faculté : G. SAINT-PE

AVANT-PROPOS.
=====

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Minéralogie et de Pétrographie de l'Université de Strasbourg sous la direction de Monsieur le Professeur S. GOLDSZTAUB. Depuis mon entrée dans son laboratoire en 1953 comme technicien Monsieur GOLDSZTAUB a contribué de façon déterminante à ma formation. C'est sur ses conseils que j'ai entrepris des études supérieures, il m'a guidé tout au long de mes études, puis m'a conseillé dans mes premiers pas de chercheur. C'est grâce à ses conseils judicieux fruits de sa grande expérience que ce travail a pu être effectué. Qu'il me soit permis de lui exprimer ma profonde gratitude.

Je tiens à remercier Monsieur J. LAVAL Professeur au Collège de France, Membre de l'Institut qui a été mon parrain scientifique. Ses conseils et encouragements ont été pour moi de la plus grande importance.

Je remercie Monsieur le Professeur H. SAUCIER pour ses suggestions et encouragements, ainsi que pour le matériel de son laboratoire qu'il a mis à ma disposition.

J'adresse tous mes remerciements à Monsieur le Professeur H. CURIEN Directeur du C.N.R.S., qui au cours de ses visites s'est toujours intéressé à mon travail

Mes remerciements vont également à Monsieur P. HAYMANT Maître de Conférences à Rouen, qui m'a fait profiter de sa grande compétence et m'a conseillé utilement.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur R. WEY qui avec Monsieur GOLDSZTAUB a déterminé ma vocation et a beaucoup contribué à ma formation, ainsi que Monsieur R. WEIL Directeur de Recherches et Monsieur J.P. EBERHART Maître de Conférences qui m'ont toujours témoigné beaucoup de bienveillance .

Je remercie Monsieur R. PLATZER Chef de service au C.E.A. qui s'est toujours intéressé à ce travail et qui a mis à ma disposition une partie des moyens.

Mes remerciements s'adressent également à Messieurs SIAT, BAPST, LANG, DEVILLE et MOSSER.

Je remercie Messieurs QUENNEVILLE et COUSANDIER qui m'ont beaucoup aidé dans la préparation des échantillons.

Mes remerciements s'adressent également à Madame BOEGLER et Melle ANSTETT ainsi qu'à Messieurs SOLLINGER, GRUSENMEYER, ALLGAYER, HAMM, CLAUSS, LE GUEN et DOMAS et tout le personnel du laboratoire.

TABLE DES MATIERES.
=====

I N T R O D U C T I O N

Importance des mesures des intensités électro- niques diffractées.	1
---	---

C H A P I T R E I
=====

Aspect théorique

1.1. Historique	3
1.2. Diffraction des électrons par un réseau cris- tallin	4
1.3. Absorption des électrons par la matière	6
1.4. Théorie de la diffusion	8
1.4.1. Diffusion dans le cas de la mécanique classique : Diffusion de Rutherford	8
1.4.2. Section efficace différentielle	11
1.4.3. Diffusion dans le cas de la mécanique ondulatoire	14
1.5. Modification de l'intensité diffractée dans le cas d'un réseau cristallin présentant des défauts	27
1.5.1. Correction de l'agitation thermique facteur de Debeye - Waller	29
1.6. Diffusion inélastique	29

1.6.1. Diffusion par oscillation des plasmons	31
1.7. Remarques sur les mesures des intensités diffusées par les corps amorphes	33
1.8. Théorie dynamique de la diffraction	35
1.8.1. Conditions aux limites	35
1.8.2. Théorie à 2 faisceaux : approximation du 1er ordre	36
1.8.3. Théorie à 2 faisceaux : approximation du 2è ordre	37
1.9. Absorption anormale	42

CHAPITRE II

=====

Description de l'appareillage

2.1. Diffracteur d'électrons rapides	44
2.1.1. Piège refroidi à l'azote liquide	48
2.1.2. Porte-préparation	49
2.1.3. Cylindres de Faraday	49
2.2. Diffracteur d'énergie moyenne	51
2.2.1. Enceinte et groupe de pompage	53
2.2.2. Canon à électrons et dispositif de mesure des intensités électroniques diffractées	55
2.2.3. Porte-échantillon orientable	57
2.2.4. Canon à ions	58
2.3. Tronçonneuse par électro-érosion	60
2.4. Mesure des épaisseurs	63

CHAPITRE III

=====

Résultats expérimentaux

3.1. Etude préliminaire de quelques cristaux dans la gamme des énergies moyennes	64
3.1.1. Détermination de l'énergie minima permettant d'obtenir des diagrammes par transmission	64
3.1.2. Etude des diagrammes de diffraction de cristaux de NaCl entre 800 et 2300 V	65
3.1.3. Comparaison des diagrammes de dif- fraction obtenus à 1500 Volts avec des cristaux de LiF, NaCl et PbS	68
3.2. Mesure des intensités électroniques diffractées	69
3.2.1. Méthodes directes	69
3.2.2. Méthodes indirectes	70
3.2.3. Méthodes utilisées dans le présent travail	70
3.3. Interprétation des mesures d'intensités	72
3.4. Etude des préparations polycristallines d'aluminium par transmission	77
3.4.1. Obtention des films minces	77
3.4.2. Etude des intensités diffractées en valeurs relatives	77
3.4.3. Répartition de l'intensité incidente entre le fond continu et la diffusion élastique	81

3.4.4. Détermination des facteurs de diffusion atomique pour l'aluminium	83
3.5. Etude d'échantillons d'aluminium par réflexion	88
3.6. Etude des préparations polycristallines d'Argent par transmission	91
3.7. Etude des préparations polycristallines de platine par transmission	95
3.8. Etude des préparations de Platine monocristallines	96
Conclusion	96

INTRODUCTION . =====

Importance des mesures des intensités électroniques diffractées.

La diffraction électronique a pris de nos jours une importance considérable, spécialement dans l'étude des couches minces et dans la détermination des structures superficielles. Cependant l'emploi des électrons est encore loin d'avoir atteint le stade de développement des Rayons X. En particulier l'interprétation des intensités électroniques diffractées est encore incertaine. Or, comme on le sait on ne peut en général pas déterminer complètement une structure sans faire intervenir les intensités des différentes réflexions.

Un élément nécessaire à cette interprétation est le facteur de diffusion atomique pour les électrons. Il est analogue à celui bien connu pour les Rayons X auquel du reste il est relié par une relation calculée dans le cas de l'approximation de Born.

Les facteurs de diffusion atomique pour les électrons ont également été calculés d'après les modèles atomiques de Hartree - Fock et Fermi - Dirac, mais aucune mesure directe de ce facteur n'a été faite jusqu'à ce jour.

Les hypothèses sur lesquelles reposent les calculs des facteurs de diffusion ne sont valables que pour des électrons dont l'énergie est de l'ordre de 50 Kev. C'est l'énergie des électrons couramment utilisée dans les diffractomètres classiques. Les électrons de faible énergie utilisés actuellement dans les études de surfaces ont vis à vis de la matière un

comportement très différent; il était donc intéressant de mettre en évidence le comportement du facteur de diffusion atomique pour des électrons d'énergie de plus en plus faible. Dans ce travail j'ai effectué des mesures absolues du facteur de diffusion atomique dans la gamme d'énergie comprise entre 50 Kev et 2,5 Kev dans le but suivant :

- Vérifier s'il y a accord avec les valeurs théoriques.
- Vérifier si la notion de facteur de diffusion est encore applicable à des électrons d'une énergie de l'ordre de 1000 Volts.

C H A P I T R E I

=====

A S P E C T T H E O R I Q U E

1.1. Historique.

=====

C'est en 1923 que DAVISSON et KUNSMAN (1) ont observé des réflexions discrètes à la surface d'un cristal de platine. Ce n'est qu'après la découverte de la mécanique ondulatoire par L. de BROGLIE (2) en 1924 que ELSASSER (3) pensa que les expériences de Davisson et Kunsman s'expliqueraient par l'interférence des rayons électroniques.

En 1927 DAVISSON et GERMER (4) d'une part THOMSON et REID (5) d'autre part ont montré clairement la diffraction des électrons par les cristaux. Depuis cette technique n'a fait que progresser.

Dès 1928 BETHE (6) a adapté la théorie d'EWALD (7) sur la diffraction des Rayons X, à l'étude des intensités électroniques diffractées, avec l'hypothèse toutefois que le potentiel interne dans le cristal soit faible par rapport à l'énergie des électrons incidents. Par la suite différents auteurs ont complété et vérifié cette théorie (8 à 12). Tous ces auteurs n'ont pas tenu compte de la diffusion inélastique des électrons par la matière. Or, cette diffusion est très importante et beaucoup de chercheurs sont penchés sur ce problème actuellement.

Une description qualitative de ce problème a été faite par BODO v. BORRIES (13) et depuis les sections efficaces différentielles de diffusion inélastique ont été calculées par

différents auteurs (14 à 21). Quelques déterminations expérimentales ont été faites (22 à 24). Ce n'est que très récemment que divers auteurs KAMME (25), OHTSUKI (26) et MAC RAY (27) ont étendu ces théories aux électrons de faible énergie. Les premières déterminations de valeurs relatives du facteur de diffusion atomique ont été effectuées par G.P. THOMSON (28) en 1929 puis par MARK et WIERL (29). Depuis très peu de mesures ont été faites (30 à 33).

Différents traités sur les théories de la diffraction électronique et des Rayons X ont été consultés (34 à 48).

1.2. DIFFRACTION DES ELECTRONS PAR UN RESEAU CRISTALLIN.

=====

D'après la mécanique ondulatoire de L. de BROGLIE (2) chaque particule en mouvement est accompagnée d'une onde de longueur λ donnée par la relation :

$$\lambda = \frac{h}{mv} \quad (1)$$

h est la constante de Planck ($h = 6,62 \cdot 10^{-34}$ J . s)

m est la masse de la particule en mouvement (pour l'électron $m_e = 0,91 \cdot 10^{-30}$ kg)

v est la vitesse de la particule en m/s

En exprimant v en fonction du potentiel accélérateur de l'électron on obtient :

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2 \cdot e \cdot m \cdot V}} = \sqrt{\frac{150}{V}} \quad (2)$$

λ longueur d'onde exprimée en Angströms

V potentiel d'accélération de l'électron exprimé en volts.

Pour des tensions d'accélération supérieures à 50 KV il faut tenir compte de la correction relativiste .

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2emV}} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{eV}{2mc^2}}} \quad (3)$$

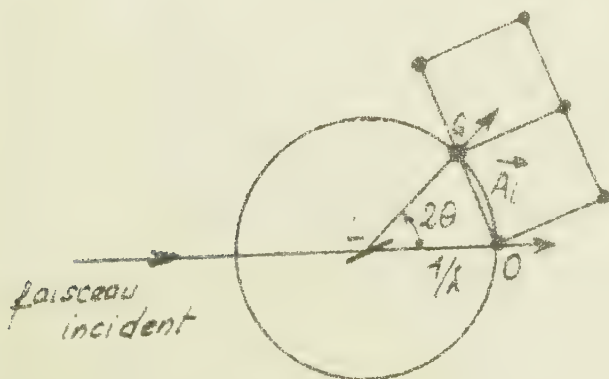
Le tableau de la page donne pour différents potentiels d'accélération :

- la longueur de l'onde associée (compte tenu de la correction relativiste)
- le rapport $\beta = \frac{v}{c}$ (c étant la célérité)
- la vitesse de groupe v en m/s (vitesse des particules)
- le produit $H \cdot r = \frac{\sqrt{2emcV}}{e}$

H Intensité du champ magnétique en gauss

r rayon de la trajectoire de l'électron soumis aux forces de Lorentz

Ces longueurs d'onde sont voisines des distances interatomiques dans les cristaux, la diffraction des électrons par les réseaux cristallins est donc possible. On aura un rayon diffracté chaque fois qu'un noeud du réseau réciproque coupe la sphère d'Ewald de rayon $1/\lambda$



$$OG = |\vec{A}_i| = Npqr$$

On sait que le réseau réciproque est lié au réseau direct par la relation :

$$\vec{a}_i \vec{A}_j = \delta_{ij} \quad (4)$$

$$\delta_{ij} = 0 \text{ si } i \neq j \quad \vec{a}_i \text{ vecteur du réseau direct}$$

$$\delta_{ij} = 1 \text{ si } i = j \quad \vec{A}_j \text{ vecteur du réseau réciproque}$$

Si nous appelons :

$$|\vec{a}_i| = d_{pqr} \quad \text{distance de deux plans du réseau direct}$$

et $|\vec{A}_i| = N_{pqr}$ distance de deux noeuds du réseau réciproque

La relation (4) nous permet d'écrire :

$$d_{pqr} = \frac{1}{N_{pqr}}$$

Si nous exprimons $|\vec{A}_i|$ en fonction de λ et de 2θ d'après la figure 1 on aura :

$$d_{pqr} = \frac{n\lambda}{2 \sin \theta} \quad (5)$$

La relation (5) est la loi de Bragg.

1.3. ABSORPTION DES ELECTRONS PAR LA MATIERE.

Les électrons qui tombent sur un film matériel ne sont pas tous diffusés élastiquement (loi de Bragg). Une partie des électrons incidents est diffusée inélastiquement. Une autre fraction du faisceau incident est purement

absorbée par la matière du film et donne naissance à l'émission de Rayons X; en première approximation le nombre dN d'électrons absorbés au passage d'une lame d'épaisseur dz est donnée par la relation (6)

$$dN = -\mu N dz \quad (6)$$

N = nombre total d'électrons incidents

μ = coefficient d'absorption normale

On obtient donc :

$$I_{ot} = I_o e^{-\mu z} \quad (7)$$

I_{ot} = intensité transmise

I_o = intensité incidente

Cette absorption que l'on appelle normale a été mesurée par YOSHIOKA (49) à partir des intensités des franges d'égale épaisseur. Il est facile de tenir compte de l'absorption normale mais elle ne se manifeste jamais seule.

HONJO et MIHAMA (50) ont montré l'existence d'une absorption anormale comparable à l'effet BORMANN (51) pour les Rayons X. Nous verrons au paragraphe 4.9 de quelle façon on peut tenir compte de l'absorption anormale.

Sur la figure 2 extraite de (35) est représentée la fraction de I_o absorbée par un film d'aluminium en fonction de son épaisseur pour des électrons incidents de 90 KeV.

D'après cette courbe l'absorption est pratiquement négligeable pour une épaisseur du film inférieure à 75 microns.

Si on détermine l'intensité transmise I_{ot} , dans la direction du faisceau incident on constate que :

$$I_{ot} = 0,5 I_0$$

pour une épaisseur du film de 100 Å. Cette diminution importante de I_{ot} est due surtout à la diffusion inélastique.

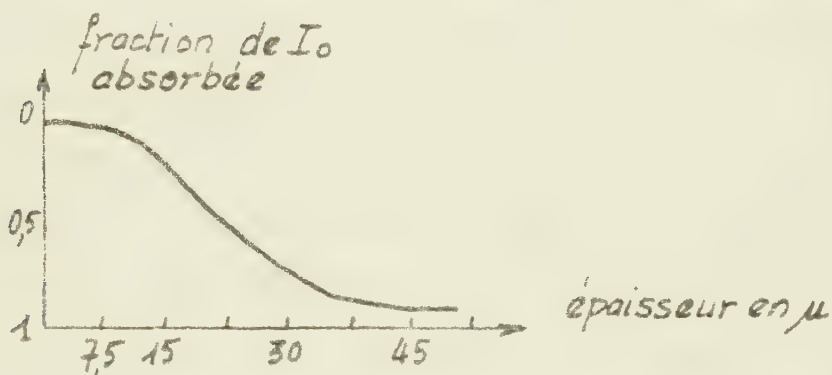


fig. 2

1.4. THEORIE DE LA DIFFUSION.

=====

1.4.1. Diffusion dans le cas de la mécanique classique :

Diffusion de Rutherford.

Si un faisceau d'électrons tombe sur un film mince métallique les électrons lors du passage voient leur trajectoire modifiée soit par percussion avec les atomes du métal, soit sous l'effet du potentiel interatomique. Cette déviation des électrons est accompagnée d'une perte d'énergie si l'interaction se fait avec des particules de même masse que les

électrons du faisceau, et nous avons à faire à la diffusion inélastique (paragraphe 1.6).

Si la masse M des particules qui interagissent est grande vis-à-vis de la masse m de l'électron (c'est le cas des noyaux atomiques) on peut admettre en première approximation que la particule de masse M reste immobile lors du processus d'interaction; l'électron incident voit sa trajectoire modifiée, mais garde toute son énergie, nous avons dans ce cas une diffusion élastique.

La diffusion élastique et la diffusion inélastique sont deux cas extrêmes et en pratique elles coexistent; ainsi les relations qu'on peut établir en ne considérant que la diffusion élastique sont forcément approchées.

La figure 3 représente la distribution des vitesses des électrons ayant traversé une lamelle de mica; on remarque que pratiquement tous les électrons ont subi une perte d'énergie dans le film.

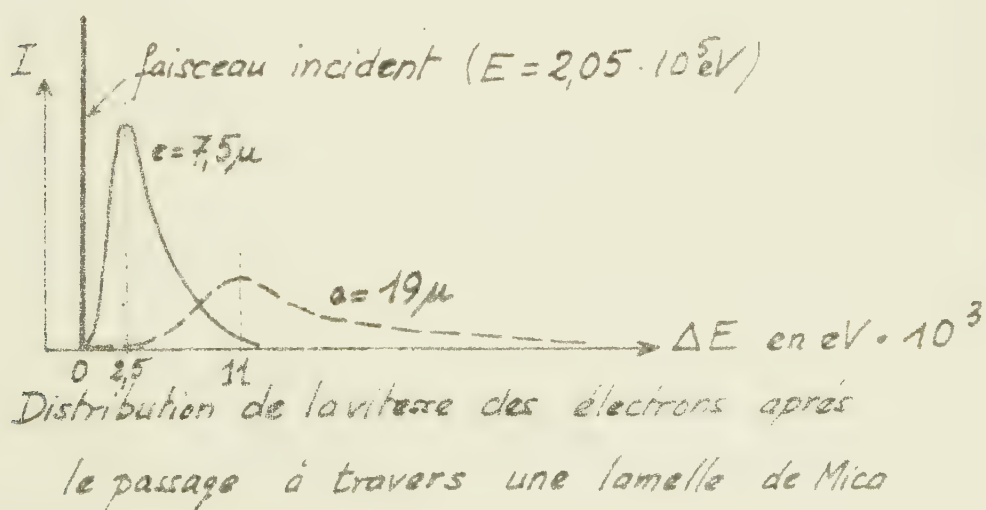


fig. 3

Lenard (52) a étudié la perte de vitesse des faisceaux d'électrons tombant normalement sur un film d'aluminium et il a chiffré la perte de vitesse maximale qu'avait subi le plus grand nombre des électrons du faisceau. Le tableau de la page résume les résultats obtenus.

Ce problème a été beaucoup étudié depuis. (48, 74)

Dans le cas de l'aluminium les pertes caractéristiques sont aujourd'hui bien connues, elles correspondent à la répétition ou la combinaison de deux pertes d'énergie élémentaire de 7 et 15 eV.

L'étude de l'interaction de deux particules chargées A et B (on admettra que la masse de A est grande vis-à-vis de la masse ^{de} B) permet de calculer la trajectoire de la particule mobile B. (Voir figure 4)

Si 2θ représente l'angle dont a été dévié l'électron on peut écrire :

$$\operatorname{tg} \theta = \frac{q_1 q_2}{M v_{\infty}^2 p}$$

(8)

q_1, q_2 sont les charges portées par les particules A et B

$$M = \frac{m_1 \cdot m_2}{m_1 + m_2}$$

m_1 et m_2 étant les masses des particules A et B

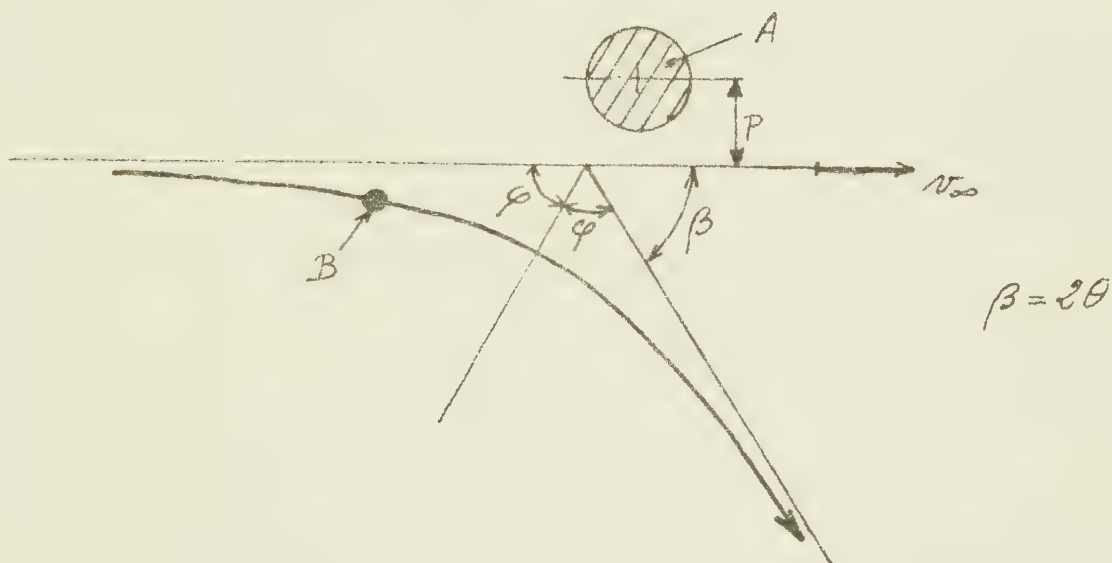


fig. 4

1.4.2. Section efficace différentielle.

Considérons un flux d'électrons de densité uniforme J_0 qui tombe sur un centre diffuseur (atome). Il est intéressant de définir le nombre de corpuscules dN' diffusés entre deux cônes dont les demi-angles au sommet sont respectivement 2θ et $2\theta + d\theta$ (fig. 5) en fonction de p .

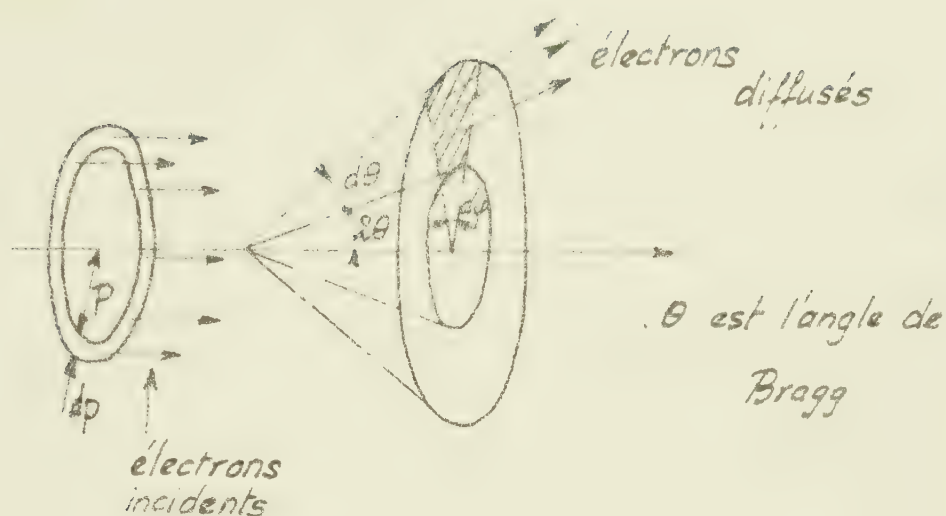


fig. 5

$$dN' = 2\pi p \, dp \, J_0$$

J_0 = nombre de particules par unité de surface et de temps dans le faisceau incident.

Si la matière diffusante est constituée par N centres diffuseurs par cm^3 on aura :

$$dN = dN' \cdot N S t$$

$$dN = 2\pi p \, dp \, J_0 \, N S t$$

S = section du faisceau incident

t = épaisseur du film

dN = nombre de particules diffusées par unité de temps entre les deux cônes.

Considérons maintenant le nombre d'électrons dN diffusés dans l'angle solide $d\Omega$ défini par l'azimuth $d\varphi$

$$d\nu = 2\pi p dp J_0 N S t \cdot \frac{d\varphi}{2\pi} \quad \text{or} \quad d\Omega = \sin 2\theta d\theta d\varphi$$

$$\text{donc} \quad d\nu = p dp J_0 N S t \frac{d\Omega}{\sin 2\theta d\theta}$$

$$d\nu = J_0 N S t d\Omega \frac{p dp}{\sin 2\theta d\theta}$$

$$\text{posons} \quad \frac{p dp}{\sin 2\theta d\theta} = \sigma(\Omega) = \frac{d\nu}{J_0 N S t d\Omega}$$

Dans le cas qui nous préoccupe, interaction électron-atome
on aura d'après la relation (8) :

$$\sigma(\Omega) = \left(\frac{Z e^2}{2mv^2 \sin^2 \theta} \right)^2 = \left(\frac{e^2 m Z}{2h^2 k^2 \sin^2 \theta} \right)^2 \quad (9)$$

Z = numéro atomique de l'atome

e = charge de l'électron ($e = 1,6 \cdot 10^{-19}$ Cb)

m = masse de l'électron

v = vitesse de l'électron

k = vecteur d'onde $k = \frac{2\pi}{\lambda}$

$\sigma(\Omega) =$ section efficace différentielle de diffusion
élastique.

Si on pose :

$\nu_0 = J_0 S$ nombre de particules incidentes par unité de
temps

ν_θ = nombre de particules diffusées dans la direc-
tion définie par l'angle 2θ par unité de

temps. On obtient la formule de Rutherford (1911)

$$\frac{\nu_\theta}{\nu_0} = N t \sigma(\Omega) = N t \left(\frac{Z e^2}{2 m v^2 \sin^2 \theta} \right)^2 \quad (10)$$

Nous pouvons remarquer dès à présent que $\sigma(\Omega)$ est dans la mécanique classique l'équivalent du facteur de diffusion atomique $f(\theta)$

$$\sigma(\Omega) = [f(\theta)]^2$$

Il est à noter que :

$$\int_0^{2\pi} \sigma(\Omega) d\Omega = \sigma_{\text{tot}} \quad \sigma_{\text{tot}} = \text{section efficace totale}$$

$\sigma(\Omega)$ et σ_{tot} ont les dimensions d'une surface, l'unité est le barn

$$1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$$

1.4.3. Diffusion dans le cas de la mécanique ondulatoire.

1.4.3.1. Equation de Schrödinger.

Dans le cas de la mécanique ondulatoire à chaque électron est associée une onde plane :

$$\psi_0 = A e^{i \vec{k}_0 \cdot \vec{r}} \quad (\text{onde plane})$$

La fonction d'onde ψ_0 est la solution de l'équation de Schrödinger :

$$\Delta \psi + \frac{8 \pi^2 m e}{h^2} [E + V(r)] \psi = 0 \quad (11)$$

E = Potentiel d'accélération des électrons

$V(r)$ = Potentiel électrostatique dans le cristal.

Si nous prenons $V(r)$ sous forme d'une série de Fourier qui caractérise le potentiel périodique dans le cristal, la résolution de l'équation (11) donnera le cas le plus général : la théorie dynamique à n faisceaux.

Posons
$$\frac{8\pi^2 e m}{h^2} \cdot V(r) = U(r)$$

et
$$U(r) = \sum_g v_g e^{2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r}} \quad (12)$$

La connaissance de ψ nous permet de calculer le nombre N d'électrons par unité de volume.

$$N = |\psi \psi^*| = |A|^2$$

Connaissant N , la densité de courant J sera donnée par l'expression :

$$J = -e v |A|^2 = -e v N \quad (13)$$

En déterminant les fonctions d'onde ψ_0 et ψ_d on peut donc calculer le courant diffusé. (ψ_d caractérise l'onde diffusée). Si nous introduisons le potentiel périodique (12) dans l'expression (11) et en considérant une onde incidente plane, nous aurons, d'après le théorème de Floquet - Bloch dans le cristal, non pas une seule onde, mais une série d'ondes qui seront solution de l'équation de Schrödinger. L'équation (11) devient :

$$[K^2 - k_h^2] \cdot \sum_h v_h e^{i(\vec{k}_h \cdot \vec{r})} + \sum_g v_g e^{2\pi i(\vec{g} \cdot \vec{r})} \cdot \sum_p \psi_p e^{i(\vec{k}_p \cdot \vec{r})} = 0 \quad (14)$$

$\vec{K}$ = vecteur d'onde pour $V = 0$ (vide)

$\vec{k}_h$ = vecteur d'onde de l'onde ψ_h dans le cristal

Pour satisfaire l'équation (14) on écrit que les différents termes sont nuls séparément ce qui donne le système d'équations (15) :

$$\psi_h (K^2 - k_h^2) + \sum_g v_g \psi_{h-g} = 0 \quad (15)$$

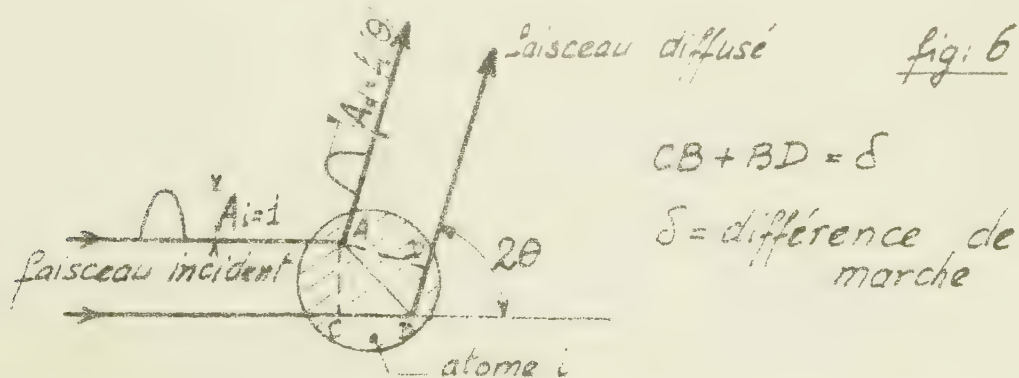
Cette expression est tout à fait générale.

Ce système d'équations nous permet de calculer les vecteurs d'ondes puis les amplitudes des différentes ondes. La résolution dans le cas général est très compliquée aussi sommes nous obligés de faire certaines approximations pour pouvoir aboutir à des résultats simples et utilisables.

1.4.3.2. Approximation de Born ou approximation d'ordre zéro.

(Théorie cinématique)

Dans cette approximation nous supposons qu'il n'y a aucune interaction entre ondes incidentes et ondes diffusées (diffusion simple). C'est le cas de la théorie cinématique. Cela se traduit dans l'expression des potentiels périodiques (12) par le fait que tous les termes sauf $v = v_0$ sont nuls. On résout l'équation de Schrödinger compte tenu de ces hypothèses et on introduit le facteur de diffusion pour les électrons $f_i(\theta)$ qui correspond à l'amplitude diffusée par l'atome i dans la direction définie par l'angle 2θ , si l'amplitude de l'onde incidente est égale à 1.



Ondes diffusées par les diverses régions d'un atome.

1.4.3.3. Diffusion des électrons par un atome.

En résolvant l'équation de Schrödinger on obtient la relation suivante :

$$J_d = \left(\frac{e^2 |f_e|}{2mv^2 \sin^2 \theta} \right)^2 \frac{J_o}{r_o^2} \quad (16)$$

J_d = Intensité diffusée dans la direction définie par l'angle 2θ

J_o = Densité de courant du faisceau incident

r_o = Distance de la préparation à l'écran fluorescent.

Nous pouvons constater qu'il y a une analogie totale entre (16) et (10). Z a été remplacé par $|f_e|$ facteur de diffusion atomique pour les électrons. (Voir appendice)

$$|f_e| = Z - f_{Rx}$$

f_{Rx} est le facteur de diffusion atomique pour les Rayons X.

Il faut remarquer que la formule (16) obtenue par des considérations non relativistes à partir de l'équation de Schrödinger nécessite une correction pour les fortes énergies : Mott^m a tenu compte en introduisant la correction relativiste de Dirac :

La relation (16) est à multiplier par le facteur R

$$R = (1 - \beta^2)(1 - \beta^2 \sin^2 \theta) \quad (17)$$

$$\text{Si nous posons } |f(\theta)| = \frac{e^2 |f_e|}{2mv^2 \sin^2 \theta} = \frac{me^2 |f_e|}{2h^2 \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2}$$

Coefficient qui figure dans les tables internationales. (53)

Nous aurons :

$$|f(\theta)|^2 = \sigma(\Omega) \quad (18)$$

or $\sigma(\Omega)$ est la section efficace différentielle.

1.4.3.4. Diffusion des électrons par les atomes d'un cristal.

Sans revenir sur la définition d'un cristal j'appellerai :

d_{pqr} = distance réticulaire entre plans (pqr)

a = paramètre du réseau primitif

b = paramètre du réseau réciproque

Partons de la relation (16).

Dans le cas d'un cristal nous pouvons avoir plusieurs atomes par maille donc $|f_e|$ est à remplacer par $|F_e|$ facteur de structure de la maille.

$$F_e = \sum_j f_e e^{-2\pi i (px + qy + rz)}$$

p, q, r , sont les indices d'une famille de plans réticulaires.

x, y, z , les coordonnées des atomes dans le réseau direct.

Un cristallite est formé d'un grand nombre de mailles élémentaires, il faut donc introduire le facteur de forme du cristal G .

$$G = \sum_{M_1} \sum_{M_2} \sum_{M_3} \exp - 2\pi i (up + vq + wr)$$

u, v, w coordonnées des différentes mailles.

En développant on obtient :

$$|G|^2 = \frac{\sin^2 \pi M_1 h_1}{\sin^2 \pi h_1} \cdot \frac{\sin^2 \pi M_2 h_2}{\sin^2 \pi h_2} \cdot \frac{\sin^2 \pi M_3 h_3}{\sin^2 \pi h_3}$$

M_1, M_2, M_3 nombre de mailles élémentaires respectivement selon Ox, Oy et Oz.

h_1, h_2, h_3 indices des noeuds du réseau réciproque.

La relation (16) devient par conséquent :

$$J_d = \left(\frac{e^2 |F_e|}{2mv^2 \sin^2 \theta} \right)^2 \cdot \frac{J_0}{r_0^2} \cdot |G|^2 \quad (19)$$

1.4.3.5. Intensité diffractée dans le cas de films polycristallins.

Il est à noter que dans ce paragraphe on ne fait intervenir que la diffusion simple; les formules ne s'appliquent donc qu'à des préparations relativement minces ($t < 100 \text{ \AA}$) pour lesquelles on se trouve dans le cas de l'approximation de Born. Le cas des préparations épaisses est traité dans le paragraphe 1.8. relatif à la théorie dynamique.

L'expression de l'intensité diffusée (19) ne tient pas compte du fait que, dans un film polycristallin à distribution uniforme des cristallites, seule une faible fraction de ces derniers se trouve dans des conditions de réflexion de Bragg. Pour déterminer leur nombre nous devons tenir compte de l'ouverture du faisceau incident et de la variation de la longueur d'onde (facteur de Lorentz).

Considérons une direction incidente $\vec{s}_0$ et désignons l'ouverture du faisceau incident par l'angle solide Ω .

Supposons que K cristallites dont chacun à N mailles soient

traversés par le faisceau incident.

L'intensité incidente se répartit dans le domaine spectral dk et dans l'angle solide $d\Omega$

on rappelle que $k = \frac{2\pi}{\lambda}$

φ étant l'angle d'azimuth

$$\begin{aligned} i_0 dk d\Omega &= i_0 dk \sin\theta d\theta d\varphi \\ &= 4 i_0 dk \sin\theta d\left(\sin\frac{\theta}{2}\right) d\varphi \end{aligned}$$

i_0 = densité de courant supposée constante dans l'angle solide Ω .

La diffusion due à un seul cristallite sera d'après la relation (15) :

$$J_d dk d\Omega = \frac{4 i_0 dk}{r^2} \sin\theta d(\sin\theta) d\varphi j_e |F_e|^2 \cdot |G|^2$$

$$j_e = \left(\frac{e^2}{2mv^2 \sin^2\theta} \right)^2$$

r = distance entre préparation et écran d'observation.

Des K cristallites considérés, seuls. $\frac{K d\Omega}{4\pi}$ sont en position de diffraction vue l'ouverture du faisceau.

L'intensité diffusée dans la direction $\vec{s}$ deviendra après intégration sur θ, φ et $d\Omega$

$$I dk = \frac{i_0 dk j_e \Delta\varphi |F_e|^2 K N}{4\pi r^2 k^2 (a_1 a_2 a_3)^2 \sin\theta}$$

Il faut encore intégrer cette relation entre θ' et θ''

angles qui définissent les bords intérieurs et extérieurs de

l'anneau de diffraction.

$$dk \int I d\theta = \frac{i_o dk j_e \lambda / |F_e|^2 K N}{4\pi r^2 k^2 2\sin\theta (a_1 a_2 a_3)} \int \Delta\varphi d\theta$$

$$\text{or } \int \Delta\varphi d\theta = \frac{5\pi}{\sin\theta}$$

$$\text{donc } dk \int I d\theta = \frac{i_o dk j_e 5\lambda |F_e|^2 K N}{4\pi r^2 k^2 2\sin\theta \sin 2\theta (a_1 a_2 a_3)}$$

$$\text{Posons : } I = \frac{K N \lambda}{4\pi k^2 2\sin\theta \sin 2\theta (a_1 a_2 a_3)}$$

C'est le facteur de Lorentz

Comme le rayonnement n'est jamais parfaitement monochromatique il faut enfin intégrer sur k et on obtient l'intensité intégrée de l'anneau :

$$I_{\text{int}} = I_o t j_e \left| \frac{F_e}{S_p} \right|^2 \lambda^2 \cdot \frac{d_{pqr}}{2} \cdot p$$

S_p = volume de la maille élémentaire

t = épaisseur de la préparation

p = multiplicité des plans (pqr)

$$j_e |F_e|^2 = |F_{pqr}|^2$$

$$I_{\text{int}} = I_o \lambda^2 t \left| \frac{F_{pqr}}{S_p} \right|^2 \cdot \frac{d_{pqr}}{2} \cdot p \quad (20)$$

C'est l'expression de l'intensité diffractée par un film polycristallin.

Expérimentalement on détermine l'intensité avec un cylindre de Faraday dont la fente a une largeur ϵ . L'intensité mesurée est donnée par la relation suivante :

$$I_m = I_0 \lambda^2 \cdot t \left| \frac{T_{pqr}}{S_{pqr}} \right|^2 \cdot \frac{d_{pqr}^2 \epsilon}{4\pi L \lambda} \quad (21)$$

L = distance préparation - sonde

I_m = intensité mesurée par le cylindre de Faraday

1.4.6. Intensité diffractée dans le cas de films monocristallins.

Cas du cristal idéal.

Considérons un film monocristallin d'une épaisseur A_3

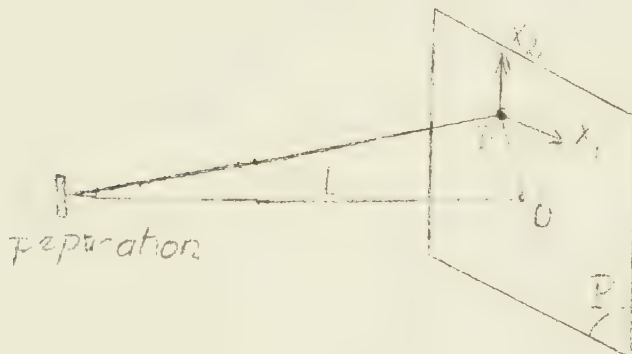


fig. 7

Supposons que le parallélépipède ci-dessous représente la portion du film qui se trouve sous le faisceau incident.

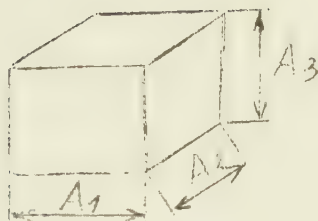


fig. 8

Nous pouvons définir la densité de courant diffusée par un plan (pqr) par la relation suivante :

$$J_{pqr} = \frac{J_0}{L^2} |F_{pqr}|^2 \cdot |G|^2 \quad (22)$$

J_{pqr} = densité de courant diffusé par le plan (pqr)

J_0 = densité de courant dans le faisceau incident

F_{pqr} = facteur de structure de la maille

$G_{h_1 h_2 h_3}$ = facteur de forme du cristal

Il est à noter que l'onde diffusée est une onde sphérique. Pour obtenir l'expression de l'intensité intégrée il faut intégrer J_{pqr} suivant x_1 et x_2 (fig. 7)

$$\begin{aligned} I_{pqr} &= \int J_{pqr} dx_1 dx_2 = \frac{J_0}{L^2} |F_{pqr}|^2 \int G_{h_1 h_2 h_3} dx_1 dx_2 \\ &= \frac{J_0}{L^2} |F_{pqr}|^2 \int \prod_{i=1,2,3} \frac{\sin^2 \pi A_i h_i}{(\pi a_i h_i)^2} dh_i \end{aligned}$$

Il n'y a pas d'intégration à effectuer sur l'élément relatif à h_3

$$I_{pqr} = \frac{J_0}{L^2} |F_{pqr}|^2 \frac{\sin^2 \pi A_i h_i}{(\pi a_i h_i)^2} \int_{i=1,2} \pi \frac{\sin^2 \pi A_i h_i}{(\pi a_i h_i)^2} d h_i$$

Sachant que :

$$\int \frac{\sin^2 \pi A_i h_i}{(\pi a_i h_i)^2} d h_i = \frac{A_i^2}{a_i^2}$$

et que :

$$\frac{\sin^2 \pi A_i h_i}{(\pi a_i h_i)^2} = \frac{A_i^2}{a_i^2} \quad \text{si } h_i \rightarrow 0$$

On obtient :

$$I_{pqr} = J_0 \lambda^2 |F_{pqr}|^2 \frac{\sin^2 \pi A_3 h_3}{(\pi a_3 h_3)^2} \cdot \frac{A_1^2}{a_1^2} \cdot \frac{A_2^2}{a_2^2}$$

Sachant que $A_1 \cdot A_2 = S$ surface irradiée par le faisceau

on obtient :

$$I_{pqr} = I_0 \lambda^2 |F_{pqr}|^2 \frac{A_3^2}{S^2_P} \quad (23)$$

A_3 étant l'épaisseur du film, on obtient avec les symboles habituels

$$I_{pqr} = I_0 \lambda^2 |F_{pqr}|^2 \frac{t^2}{S_P^2}$$

- Cas du cristal mosaïque :

Le cas du cristal parfait est un cas tout à fait théorique; en effet les cristaux réels sont formés d'un ensemble de cristallites légèrement décalés et désorientés les uns par rapport aux autres, un tel édifice est appelé cristal mosaïque. L'intensité diffractée par un tel édifice cristallin sera donc notablement différente de celle diffractée par un cristal unique parfait. En effet certains cristallites ne sont pas du tout en position de Bragg.

Les intensités diffractées intégrées ont été mesurées de la façon suivante :

On règle le cristal mosaïque au maximum de réflexion et on mesure cette intensité. Un facteur qui va être explicité tient compte du nombre de cristallites qui participent à cette réflexion.

Soit $f(\alpha)$ le nombre de cristallites ayant une orientation définie par l'angle α .

$$\int_0^{\alpha_2} f(\alpha) d\alpha = n = \frac{V'}{V}$$

n = nombre total de cristallites

V' = volume du cristal

V = volume d'un cristallite

Pour un cristallite donné on peut définir l'intensité diffractée :

$$I_{pqr} = J \cdot \lambda^2 / |F_{pqr}|^2 \cdot \frac{A_1}{a_1^2} \frac{A_2}{a_2^2} \cdot G \quad (24)$$

Cette expression est comparable à celle utilisée dans le cas du cristal parfait.



$$G = \int |G_3(x)|^2 \cdot f(x) dx$$

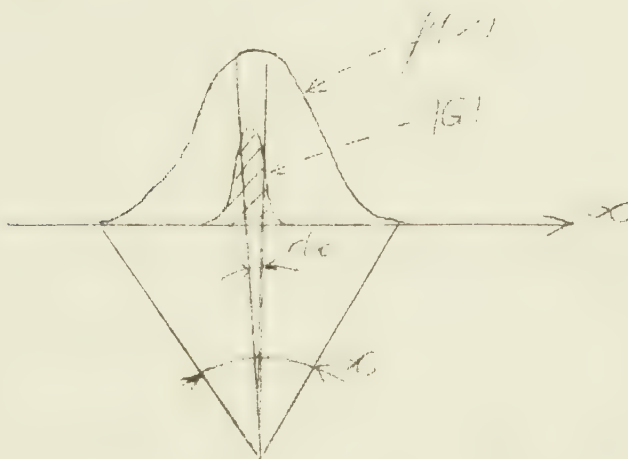


fig. 9

Expression de $f(x)$

Si la distribution est uniforme $f(x) = \frac{n}{x}$

Dans le cas d'une distribution gaussienne :

$f(x) = \frac{2n}{x} = \frac{n}{x'}$, l'expression de G devient par conséquent :

$$G = \frac{n}{x'} \int \frac{\sin^2 \pi A_3 h_3}{(\pi a_3 h_3)^2} dx$$

$$dx = \frac{dh_3}{H_{pqr}}$$

H_{pqr} = distance entre l'origine et le noeud H dans le réseau réciproque

$$G = \frac{n}{x'} d_{pqr} \int \frac{\sin^2 \pi A_3 h_3}{(\pi a_3 h_3)^2} dh_3$$

$$= \frac{n}{\alpha} d_{pqr} \frac{A_3}{a_3^2}$$

d'où l'expression de l'intensité d'une tache (pqr)

$$I_{pqr} = J_0 \lambda^2 |F_{pqr}|^2 \frac{A_1^2 A_2^2 A_3^2}{a_1^2 a_2^2 a_3^2} \frac{n d_{pqr}}{\alpha}$$

$$\frac{I_{pqr}}{I_0} = \lambda^2 \left| \frac{F_{pqr}}{S_{\rho}} \right|^2 \cdot t \cdot \frac{d_{pqr}}{\alpha} \quad (25)$$

Cette expression est à comparer à (23) il suffit pour cela de comparer t à $\frac{d_{pqr}}{\alpha}$

L'intensité diffractée par un cristal mosaïque est toujours plus faible que celle diffractée par le cristal idéal de même volume.

1.5. MODIFICATION DE L'INTENSITE DIFFRACTEE DANS LE CAS

=====

D'UN RESEAU CRISTALLIN PRESENTANT DES DEFAUTS.

=====

Les formules établies au chapitre 1.4. reposaient sur l'hypothèse d'un réseau cristallin parfait. Or, nous savons que ce cas idéal n'est jamais réalisé. Nous pouvons classer les défauts en deux catégories :

- les défauts permanents (dislocations par exemple)
- les vibrations thermiques du réseau

Si dans un cristal parfait la position de la n^{e} maille est caractérisée par le vecteur $\vec{r}_n$, dans un cristal où cette maille présente un défaut, sa position sera définie par $\vec{r}'_n = \vec{r}_n + \vec{R}_n$ $\vec{R}_n$ caractérise le déplacement accidentel (défaut)

Dans ce cas l'expression de l'amplitude diffusée devient :

$$\psi \propto \sum_{\text{pqr}} e^{2\pi i (\vec{s} \cdot \vec{r}_n)} \cdot e^{-2\pi i (\vec{s} \cdot \vec{R}_n)}$$

La présence de l'imperfection du réseau introduit donc le terme :

$$e^{-2\pi i \vec{s} \cdot \vec{R}_n}$$

Ce terme est difficile à exprimer dans le cas d'un défaut, mais si nous considérons une variation sinusoïdale (vibration thermique par exemple) on obtient les résultats suivants :

En posant :

λ longueur d'onde de la perturbation

t épaisseur du film

si $\lambda \ll t$ la largeur des pics de Bragg reste inchangée mais leur hauteur est diminuée c'est le cas des vibrations thermiques.

si $\lambda \gg t$ élargissement des pics de Bragg. C'est le cas des défauts d'empilement et des dislocations.

1.5.1. Correction de l'agitation thermique.

facteur de Debeye - Valler.

Les atomes d'un réseau ne sont pas immobiles, leurs oscillations sont fonctions de la température. Dans la théorie de DEBEYE les vibrations des atomes sont considérées comme indépendantes de celles de leurs voisins. C'est LAVAL (54) qui a établi une théorie plus satisfaisante en considérant une propagation d'ondes élastiques dans le milieu cristallin.

Compte tenu de ces considérations on peut écrire :

$$f_{eT} = f_e \cdot f_T$$

Le facteur de Debeye f_T est en général anisotrope, mais on admet comme bonne approximation l'hypothèse d'une symétrie sphérique dans les vibrations de l'atome

$$f_T = \exp \left\{ - B \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 \right\}$$

$$B = 8 \pi^2 \bar{u}^2$$

$\sqrt{\bar{u}^2}$ est l'amplitude

moyenne des vibrations de l'atome.

Différents expérimentateurs ont étudié la diffusion inélastique due aux vibrations thermiques dans le cristal.

(55, 56, 57)

1.6. DIFFUSION INELASTIQUE.

Dans la diffusion inélastique l'électron diffusé perd une partie de son énergie. Sans entrer dans le détail des

travaux théoriques de LENZ (14), FUJIMOTTO (15), MOLIERE (16) il est intéressant de signaler certains aspects de la diffusion inélastique.

Quelques expérimentateurs ont essayé de déterminer les sections efficaces différentielles (23 et 58).

La section efficace différentielle élastique s'exprime par la relation :

$$\sigma(\Omega) = \frac{4}{a_H^2 q^4} (Z - f)^2 d\Omega \quad 26$$

a_H = rayon de Bohr de l'hydrogène

$q = \frac{2\pi}{\lambda} \sin 2\theta$

Z = numéro atomique

f = facteur de diffusion atomique pour Rayons X

Si on veut tenir compte de la diffusion inélastique on obtient :

$$\sigma(\Omega) = \frac{4}{a_H^2 q^4} [(Z - f)^2 + S] d\Omega$$

S caractérise la diffusion inélastique.

Pour les faibles angles de diffusion

S peut être calculé d'après la méthode de Thomas - Fermi

$$S = \frac{4\pi^2}{3!^2} \left[\frac{\theta^2}{4} + \left(\frac{J}{4e U} \right)^2 \right] \theta_{TF}$$

$$\theta_{TF} = 54,32 Z a_H^2$$

J = énergie d'ionisation de l'atome

U = tension d'accélération des électrons

La figure 10 illustre le processus de cette diffusion.

On peut signaler les travaux de YOSHIOKA (59) de WATANABE (60) et de HARTL et RAETHER (61).

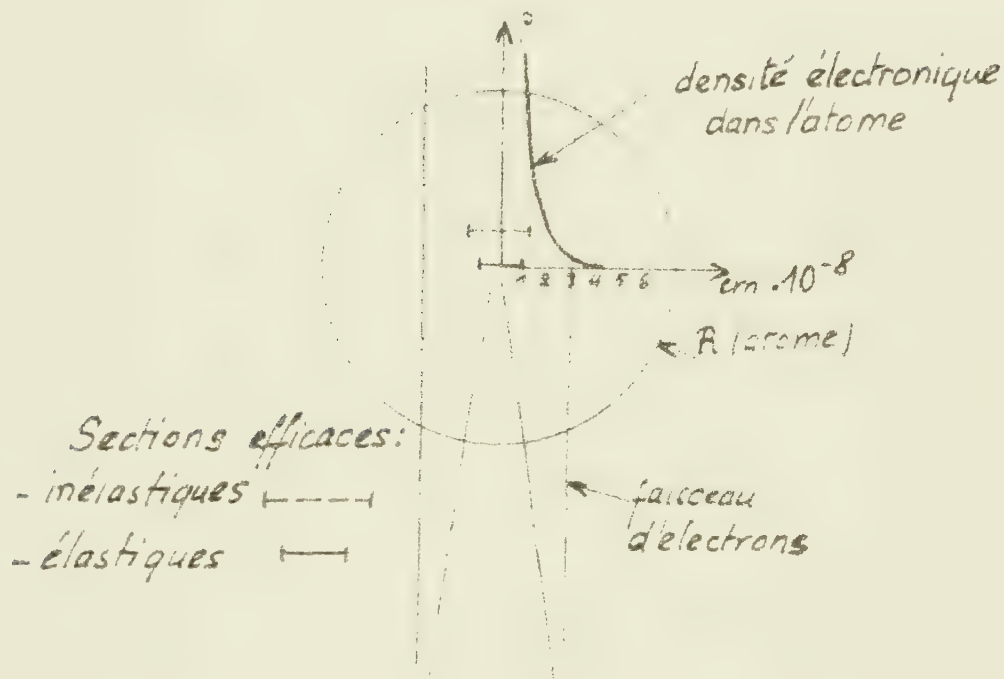


fig. 10

1.6.1. Diffusion par oscillation des plasmons.

Un électron qui tombe sur une matière condensée excite les électrons libres qui oscilleront avec une fréquence ω_p . L'électron perd par ce processus une énergie :

$$\delta E = \frac{h}{2\pi} \omega_p$$

$$\omega_p = \left(\frac{4\pi n e^2}{m} \right)^{1/2}$$

n = nombre d'électrons libres par unité de volume

La perte δE se situe pour les solides entre 8 et 30 eV.

Pour Al, $\delta E = 14,7$ eV.

La section efficace différentielle de diffusion pour plasmons s'exprime par la relation (27)

$$\sigma(\Omega) = \frac{m \delta E}{2\pi a_H \left(\frac{h}{2\pi q}\right)^2} \quad (27)$$

$$q = \frac{2\pi}{\lambda} \sin 2\theta$$

La relation (27) devient :

$$\sigma(\Omega) = \frac{d\Omega}{2\pi a_H} \frac{\beta_E}{\beta_E^2 - 4\theta^2} \quad (28)$$

$$\beta_E = \frac{\delta E}{E}$$

La relation (28) permet de calculer l'intensité diffusée, par oscillation des plasmons, dans la direction définie par l'angle 2θ .

Dans le cas d'une feuille d'aluminium d'une épaisseur de 1000 Å et pour des électrons incidents de 105 volts, 44 % des électrons incidents subissent une perte par plasmons.

En résumé :

La diffusion des électrons ayant subi une perte par oscillation des plasmons se fait surtout dans les directions de Bragg. Sans filtre de vitesse il n'est pas possible de séparer ces électrons de la diffusion élastique.

Les défauts du réseau se manifestent par un fond continu élastique. La diffusion inélastique et l'absorption enfin, diminuent la hauteur des pics de Bragg.

1.7. REMARQUES SUR LES MESURES DES INTENSITES DIFFUSEES PAR LES CORPS AMORPHES.

Nous pouvons, sous certaines restrictions, considérer les atomes d'un corps amorphe comme étant dans un état physique comparable à celui d'un gaz parfait. Les atomes du corps amorphe diffusent individuellement, il n'existe pas de relation de phase entre leurs amplitudes qui s'ajoutent arithmétiquement.

D'après la loi de Boyle - Mariotte on peut écrire pour un gaz parfait :

$$p v = k T$$

$$\text{et } v = \frac{k T}{p}$$

si f est le pouvoir diffusant atomique on aura par cm^3

$$I_d = \frac{f^2}{v}$$

L'intensité diffusée par un corps amorphe sera donc proportionnelle au nombre N d'atomes présents et non à N^2 comme c'est le cas pour les corps cristallisés. En réalité le phénomène est beaucoup plus complexe, si on représente I_d en fonction de $\frac{\sin \theta}{\lambda}$ on trouve une courbe selon la figure 11. La déduction des facteurs de diffusion à partir des couches amorphes est une méthode idéale, mais si on désire utiliser ces facteurs de diffusion pour les déterminations des structures il est préférable d'utiliser des corps cristallisés car le potentiel périodique dans le cristal modifie le modèle théorique de l'atome dans lequel on admet une distribution sphérique du potentiel.



fig. 11

De 0 à s_0 nous avons :

$$I = g (N^2 f^2); \text{ à partir de } s_0 :$$

$$I = g (N f^2)$$

Les mesures sont donc uniquement intéressantes à partir de s_0 .

Détermination de N.

Pour déterminer N nous avons plusieurs méthodes :

- Connaissant le poids et l'épaisseur de la couche on peut déterminer N
- On peut calculer N à partir des halos qui existent sur les clichés de diffusion (62)

La distance d'approche des atomes, $x_m = \frac{K \lambda}{2 \sin \theta_m}$

$$K \# 1, 2$$

θ_m = angle de Bragg qui correspond à l'anneau flou

Difficultés :

- Il faut disposer d'un système de filtrage pour pouvoir éliminer les électrons ayant été diffusés inélastiquement.

- Il est très délicat de déterminer N dans le cas de la réflexion.

1. 8. THEORIE DYNAMIQUE DE LA DIFFRACTION.

=====

Les expressions de l'intensité diffractée obtenues d'après la théorie cinématique (chapitre 1.4.) ne sont utilisables que pour des épaisseurs de préparation relativement faibles et pour des tensions élevées. Une approximation meilleure est donnée par la théorie dynamique.

Pour établir les expressions dynamiques de l'intensité diffractée partons du système d'équations (15).

$$\psi_h (K^2 - k_h^2) + \sum_g v_g \psi_{h-g} = 0 \quad (15)$$

Ce système représente le cas tout à fait général mais sa résolution est impossible. Ce n'est qu'en limitant le nombre de faisceaux diffractés que ^{l'on} peut résoudre ce système d'équations.

1.8.1. Conditions aux limites.

Si pour la théorie cinématique la seule condition à satisfaire était la conservation de l'énergie il faut poser dans le cas dynamique des conditions beaucoup plus strictes. Le cristal réel n'étant pas illimité il faudra que les fonctions d'ondes satisfassent certaines conditions à la surface de séparation cristal - vide, ces conditions sont :

$$\frac{\partial \psi}{\partial n} = \frac{\partial \psi}{\partial n} \quad (28)$$

ψ = onde dans le cristal
 ψ = onde dans le vide

Ces deux conditions sont représentées géométriquement par la figure suivante :

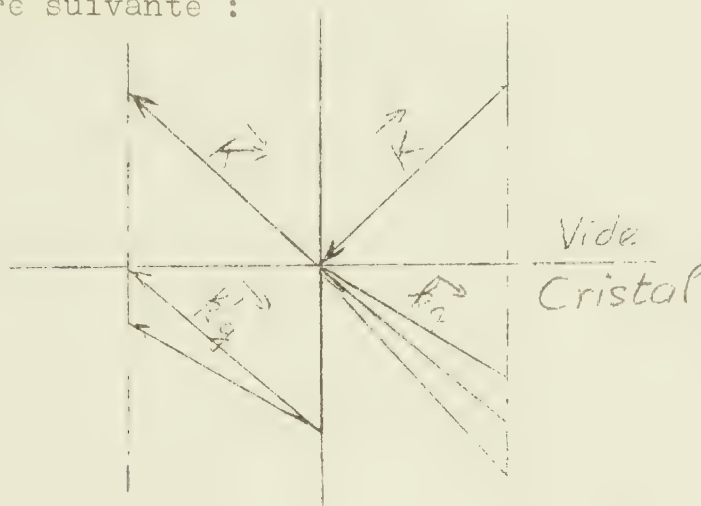


fig. 12

Les projections tangentielles de tous les vecteurs d'ondes sur la surface du cristal doivent être égales.

1.8.2. Théorie à 2 faisceaux : approximation du 1er ordre.

L'approximation du 1er ordre consiste à considérer le développement en série de Fourier du potentiel du cristal limité à 2 termes v_0 et v_g . Ce qui ramène le système d'équations (15) à deux équations qui permettent de définir ψ_0 (onde incidente) et ψ_g (onde diffractée).

$$\begin{aligned} \psi_0 (k^2 - k_0^2) + \psi_g v_g &= 0 & \text{a} \\ \psi_0 (-v_g) + \psi_g (k^2 - k_g^2) &= 0 & \text{b} \end{aligned} \quad (29)$$

ces
L'interaction entre deux ondes existe mais on conçoit que cette limitation nous écarte beaucoup de la réalité.

1.8.3. Théorie à 2 faisceaux : approximation du 2^e ordre.

Dans cette théorie on ne considère que deux faisceaux intenses ψ_0 et ψ_g , mais on tient compte de la présence de tous les autres faisceaux diffractés supposés d'intensités faibles par rapport à ψ_0 et ψ_g . C'est la théorie développée de BETHE (6). Il faut noter que dans cette théorie on supposera que l'énergie des électrons est grande par rapport à v_g , cas des électrons rapides.

Le système (15) se réduit au système (30)

$$\begin{aligned}\psi_0 (k^2 - k_0^2) + \sum_g' v_g \psi_{0-g} &= 0 \\ \psi_h (k^2 - k_h^2) + \sum_g' v_g \psi_{h-g} &= 0\end{aligned}\quad (30)$$

Pour avoir une solution de ce système il faut que son déterminant Δ soit égal à zéro.

1.8.3.1. Equation de dispersion.

L'équation $\Delta = 0$ est l'équation d'une surface appelée surface de dispersion. Elle donne une relation entre K et v_g . Il en résulte que l'équation $\Delta = 0$ établit une relation entre l'indice de réfraction et la longueur d'onde. C'est donc bien une équation de dispersion. La surface de dispersion est le lieu de l'origine des vecteurs $\vec{k}_0$ et $\vec{k}_g$. La figure 13 représente une coupe de cette surface. La résolution de l'équation $\Delta = 0$ permet de calculer les vecteurs d'onde. En introduisant ces vecteurs d'onde dans l'équations (15) on pourra calculer les amplitudes des ondes diffusées.

1.8.3.2. Sphère d'Ewald : cas dynamique.

Compte tenu des conditions aux limites et de l'approximation des 2 faisceaux on peut construire les vecteurs d'ondes incidents et diffractés dans le cristal, satisfaisant la construction d'Ewald; le rayon de la sphère étant :

$$k = \sqrt{k^2 + v_0^2} \quad \text{figure 14}$$

L'origine du réseau réciproque étant sur la sphère, les conditions aux limites déterminent la position du noeud H par rapport à la sphère; la distance H C est appelée, erreur de résonance. Dans le cas général nous aurons un dédoublement des divers vecteurs.

1.8.3.3. Potententiels dynamiques.

Considérons le système d'équations (30) ψ_0 et ψ_h sont les seules ondes intenses. Une onde faible quelconque ψ_g pourra être exprimée en fonction de ψ_0 et ψ_h .

$$\psi_g = - \frac{\psi_0 v_g + \psi_h v_{g-h}}{k^2 - k_g^2}$$

En introduisant cette expression de ψ_g dans les équations (30) on obtient :

$$\psi_0 (k^2 - k_g^2) + \sum_g' - \frac{\psi_0 v_g + \psi_h v_{g-h}}{k^2 - k_g^2} v_{-g} = 0$$

$$\psi_h (k^2 - k_h^2) + \sum_g' - \frac{\psi_0 v_g + \psi_h v_{g-h}}{k^2 - k_g^2} v_{-g} = 0 \quad (31)$$



Ces équations deviennent :

$$\begin{aligned} \psi_0 (2k - V_{11}) - \psi_h V_{12} &= 0 \\ -\psi_0 V_{12} + \psi_h (2k\varepsilon_2 - V_{22}) &= 0 \end{aligned} \quad (32)$$

En posant :

$$\begin{aligned} V_{11} &= \sum_g \frac{v_g v_{-g}}{k^2 - k_g^2} \\ V_{12} = V_{21} &= -v_h + \sum_g \frac{v_g v_{h-g}}{k^2 - k_g^2} \\ V_{22} &= \sum_g \frac{v_{g-h} v_{h-g}}{k^2 - k_g^2} \end{aligned}$$

on désigne ces grandeurs : potentiels dynamiques.

1.8.3.4. Correction de Bethe.

Dans le cas de la théorie cinématique (paragraphe 1.4.3.3.) on a défini le facteur de diffusion atomique pour les électrons.

On montre que dans le cas de l'approximation du 1er ordre le facteur de diffusion atomique est proportionnel à v_h .

L'équation (29 b) donne :

$$\psi_h = \frac{v_h}{k^2 - k_g^2} \cdot \psi_0$$

Dans le cas de l'approximation du 2è ordre v_h est à remplacer par :

$$v_h - \sum_g \frac{v_g v_{h-g}}{k^2 - k_g^2}$$

1.8.3.5. Détermination des vecteurs $\vec{k}_0$ et $\vec{k}_h$ et des intensités ----- diffractées.

Pour avoir une solution du système d'équations (32) il faut que son déterminant Δ soit nul.

$$\Delta = (2k\varepsilon_1 - V_{11})(2k\varepsilon_2 - V_{22}) - V_{12}^2 \quad (32b)$$

On peut exprimer ε_1 et ε_2 en fonction de "d" (figure 14)

L'équation (32b) permet alors de calculer d :

$$d = \frac{V_{11}}{4k \cos \theta_0} + \frac{V_{12}}{4k \cos \theta_h} - \frac{E}{2 \cos \theta_h} \pm \sqrt{A}$$

avec $A = \left(\frac{V_{11}}{4k \cos \theta_0} - \frac{V_{22}}{4k \cos \theta_h} + \frac{E}{2 \cos \theta_h} \right)^2 + \frac{V_{12}^2}{4k^2 \cos \theta_0 \cos \theta_h}$

Le discriminant A sera positif négatif ou nul suivant le signe de $\cos \theta_0$ et $\cos \theta_h$

Si $\cos \theta_0$ et $\cos \theta_h$ sont de même signe A sera positif, c'est le cas de la transmission : cas de Laue.

Si $\cos \theta_0$ et $\cos \theta_h$ sont de signe contraire A sera négatif c'est le cas de la réflexion : cas de Bragg.

La connaissance de d nous permet de calculer les vecteurs d'onde $\vec{k}_0$ et $\vec{k}_h$. En introduisant les vecteurs d'onde ainsi calculés dans l'équation (32) on peut déterminer les fonctions d'onde ψ_0 et ψ_h .

Nous aurons un dédoublement de ces fonctions d'onde comme cela apparaît sur la figure 14. On arrive ainsi à l'expression de l'intensité diffractée qui s'écrit dans le cas d'une préparation polycristalline :

$$I_{pqr} = I_0 \frac{\lambda}{2} \frac{F_{pqr}}{\Omega_p} \frac{d_{pqr}}{2} p \quad (32c)$$



1.9. ABSORPTION ANORMALE.

=====

Nous avons signalé au paragraphe 1.3. l'existence d'une absorption normale ($I = I_0 e^{-\mu z}$) et d'une absorption anormale comparable à l'effet BORMANN (51) pour les Rayons X. MOLIERE dès 1939 (63) a montré que pour tenir compte de l'absorption anormale il fallait introduire dans l'équation (29) un potentiel complexe.

$$W(r) = V(r) + i V'(r)$$

Dans le cas de la théorie à 2 faisceaux les deux fonctions d'onde ψ'_h et ψ''_h sont complexes et seront absorbées différemment.

L'effet d'absorption anormale est maximum si les conditions de Bragg sont réalisées exactement. Il est à noter que cet effet se manifeste surtout pour des épaisseurs égales à 4 fois la distance d'extinction (d_e)

Pour l'aluminium selon $[111]$ $4 d_e = 2200 \text{ \AA}$

Pour le platine selon $[111]$ $4 d_e = 640 \text{ \AA}$

BOERSCH (64) a tenu compte de l'absorption anormale en introduisant un facteur de diffusion complexe (53).

On peut signaler aussi les travaux d'OHTSUKI (65).

C H A P I T R E I I

=====

Description de l'appareillage

La détermination expérimentale des facteurs de diffusion atomiques entre 2,5 KV et 50 KV a été effectuée dans des diffracteurs d'électrons de conception classique, équipés toutefois de dispositifs de mesure électrométriques des intensités électroniques diffractées et de divers accessoires évitant la contamination des échantillons. La mesure par une méthode électrométrique de ces intensités est indispensable, en effet il faut pouvoir comparer le faisceau direct aux faisceaux diffractés. Cela exige une très bonne stabilité du faisceau d'électrons du diffracteur. Il faut d'autre part que l'échantillon soit placé dans un très bon vide afin d'éviter la formation de couches adsorbées, qui, en participant à la diffusion des électrons incidents faussent les mesures des intensités électroniques diffractées.

Il faut enfin prévoir des dispositifs permettant de nettoyer sous vide les surfaces des monocristaux par bombardement électronique ou ionique, cela surtout aux faibles tensions. Il a été impossible d'effectuer dans un même diffracteur les mesures à 2,5 KV et à 50 KV et cela pour diverses raisons :

- Un même canon à électrons ne peut donner dans une gamme d'énergie aussi vaste une bonne définition du faisceau.

- La pénétration des électrons dans la matière diminue avec leur énergie. L'effet des couches adsorbées est donc beaucoup plus important aux faibles énergies (2,5 KV). Cela m'a conduit à réaliser un diffracteur de moyenne énergie fonctionnant dans l'ultra-vide.

Ce travail comportait d'abord une partie technologique très importante qui m'a conduit à me familiariser avec la technique de l'ultra-vide, à mettre au point les dispositifs de mesure électrométriques et à réaliser divers circuits électroniques, ainsi qu'une machine à électro-érosion permettant de tailler les échantillons.

2.1. DIFFRACTEUR D'ELECTRONS RAPIDES.

=====

Ce diffracteur construit au Laboratoire de Minéralogie par MM. GOLDSZTAUB et MICHEL (66) a été perfectionné en vue de la mesure des intensités électroniques diffractées.

Nous avons surtout recherché une bonne stabilité en tension par l'adjonction de sphères de protection figure 15 ce qui a permis d'utiliser ce diffracteur jusqu'à 100 KV.

Sur la figure 17 nous avons représenté le schéma de ce diffracteur. La réalisation d'un générateur de chauffage du filament sous haute-fréquence figure 18 commandé par une alimentation stabilisée à 10^{-4} , a permis d'avoir une émission d'électrons constante dans le temps.



fig. 15

On a pu obtenir de très bonnes stabilités du faisceau incident. La courbe de la figure 16 montre la stabilité du faisceau en fonction du temps.

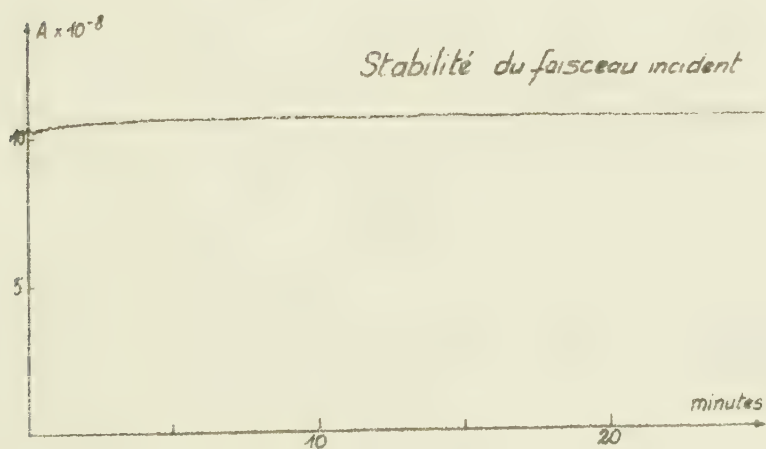
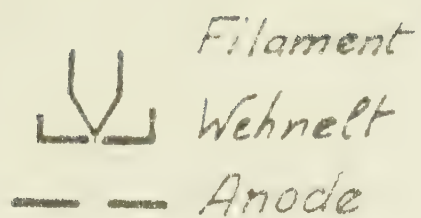


fig. 16


 Filament
 Wehnelt
 Anode

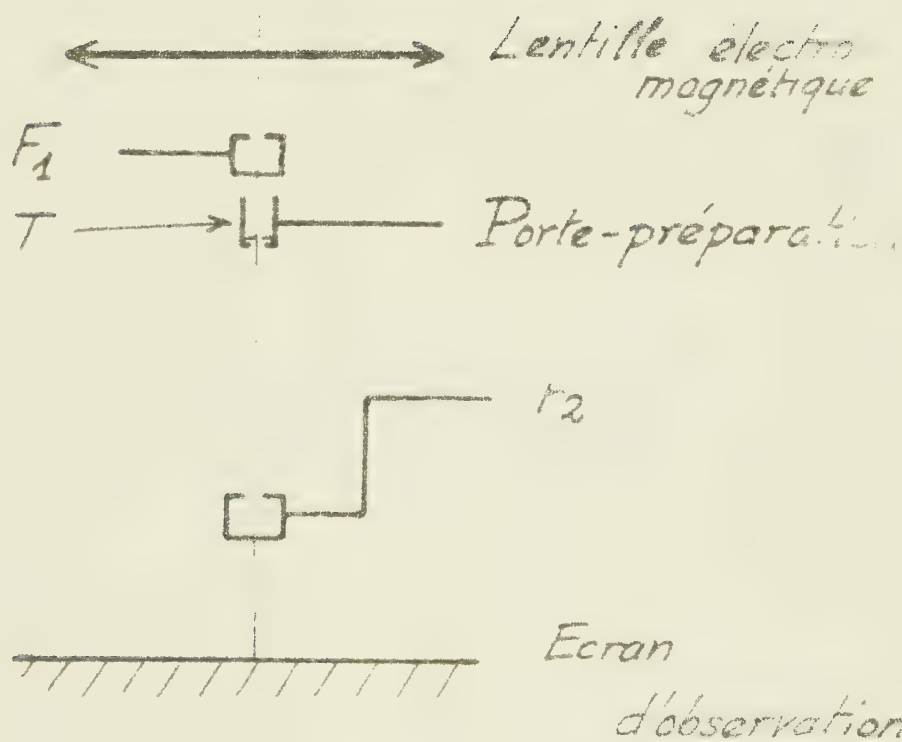


Schéma du diffracteur

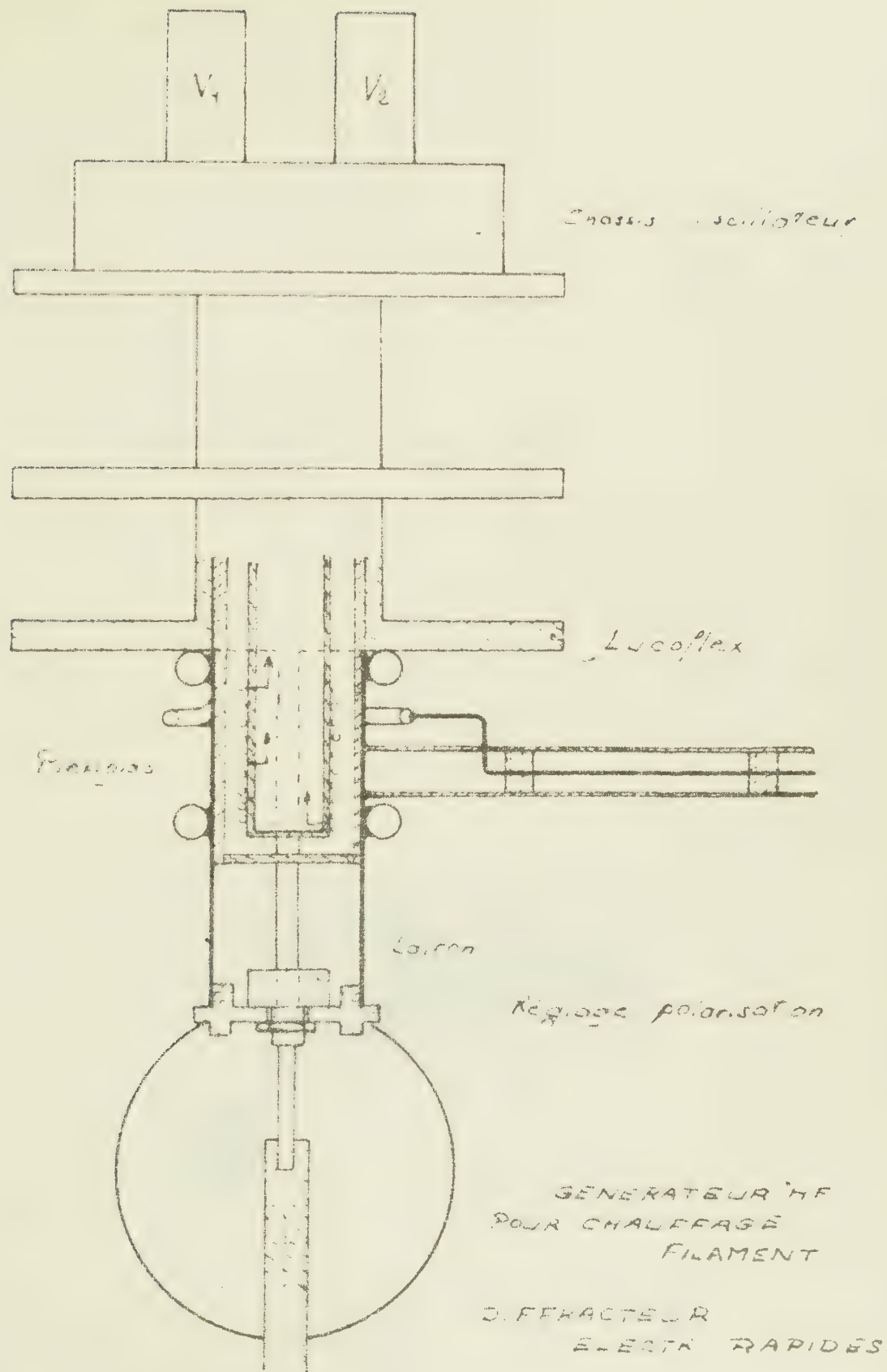


fig. 18

La haute tension est fournie par un générateur électrostatique type Samtron 100 de fabrication Sames. La tension est réglable entre 0 et 100 kV, sa stabilité est de 10^{-5} . Le vide obtenu dans l'appareil est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-5}$ mm Hg, obtenu par un groupe de pompage constitué par une pompe à palettes suivie d'une pompe à diffusion d'huile (Edwards) type 403.

2.1.1. Piège refroidi à l'azote liquide.

Dans un vide de l'ordre de 10^{-4} mm Hg la contamination de l'échantillon est importante. Elle se produit surtout pendant la diffraction, les vapeurs d'huile résiduelles sont décomposées par le faisceau d'électrons et le carbone ainsi libéré se dépose sous forme d'une fine pellicule sur la préparation. Nous avons réalisé (67) un manchon en cuivre fig. 20 contournant la préparation et refroidi à l'azote liquide.

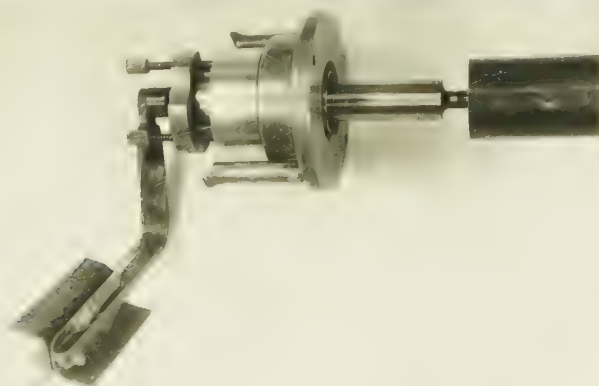


fig. 20

Les vapeurs d'huile sont ainsi piégées sur la paroi froide et la contamination se trouve considérablement réduite.

L'efficacité de ce dispositif est représentée sur la figure 21 . Si en "b" l'intensité transmise est presque constante elle diminue fortement en "a" ce qui correspond à un dépôt de carbone sur la préparation.

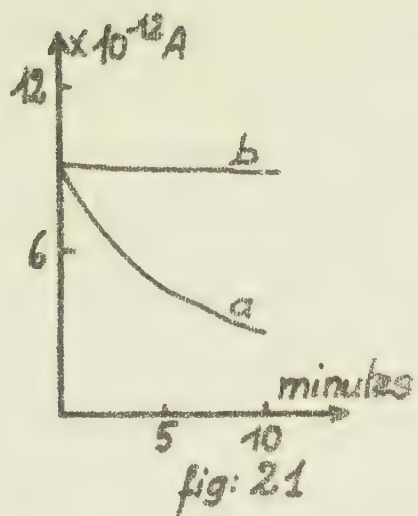
2.1.2. Porte-préparation.

Le porte-préparation orientable est un modèle prévu pour le microscope électronique O.P.L. Il a été modifié pour permettre des mesures intégrées.

Si l'échantillon se présente sous forme d'un cristal mosaïque il est nécessaire d'amener tous les cristallites en position de réflexion ce qui implique d'imprimer au cristal deux mouvements orthogonaux. L'intensité qui résulte de la contribution de tous les cristallites est l'intensité intégrée. On l'obtient en enregistrant l'intensité d'une tache (pqr) pendant que le cristal tourne à vitesse constante autour de la position de réflexion de Bragg. Un moteur synchrone entraîne par l'intermédiaire d'une transmission souple le cristal à raison de 4 degrés par minutes.

2.1.3. Cylindres de Faraday.

L'appareil est équipé de deux cylindres de Faraday, l'un, F_1 , placé à la hauteur de l'échantillon permet de mesurer l'intensité du faisceau incident, l'autre, F_2 , placé près de l'écran d'observation permet de relever l'intensité diffractée. Leurs positions par rapport à l'échantillon sont schématisées sur la figure 22 .



a - piège non refroidi
b - piège refroidi

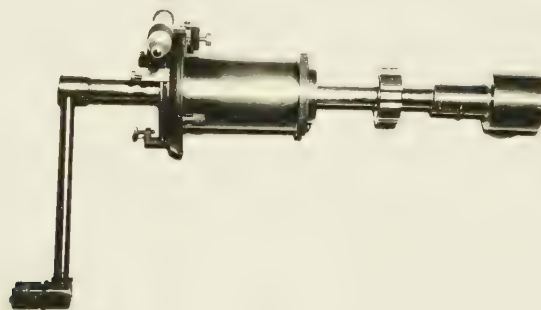


fig. 22

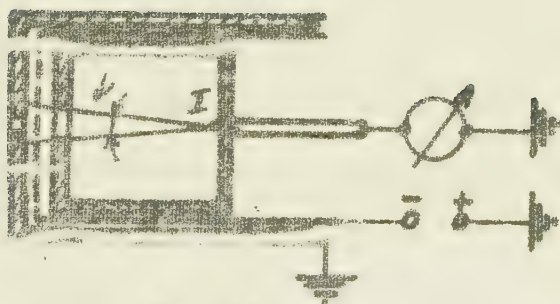


fig: 23

Le cylindre de Faraday F_2 est couplé par un conducteur coaxial rigide à un électromètre à condensateur vibrant type Carry sensible à $5 \cdot 10^{-16}$ A. Il a été décrit par ailleurs (68).

Pour explorer le diagramme on peut mouvoir le cylindre de Faraday sur une surface cylindrique. Un levier "L" figure 15 permet de tourner le tambour porte-diaphragme autour du cylindre de Faraday ce qui détermine son ouverture.

Ce tambour comporte 6 ouvertures :

0,2 ; 0,5 ; 0,8 ; 1 ; 1,5 ; 2 mm.

Les perturbations introduites par les déformations des isolants lors du mouvement du cylindre de Faraday sont de l'ordre de $5 \cdot 10^{-16}$ A. Il est par conséquent possible de déterminer des intensités de l'ordre de 10^{-14} A.

L'intérieur du cylindre de Faraday a été garni d'aquadag pour diminuer l'émission secondaire. Pour contrôler l'efficacité de la géométrie donnée au cylindre de Faraday nous avons réalisé le montage selon figure 23 .

La grille polarisée à une dizaine de volts par rapport à la masse, joue le rôle de réflecteur pour l'émission secondaire sur le fond du cylindre. Nous n'avons pas trouvé de différence entre les mesures effectuées avec grille à la masse et grille polarisée négativement. L'erreur due à l'émission secondaire est donc négligeable.

On peut chiffrer l'erreur théorique en formant le rapport :

$$\delta = \frac{\Delta \Omega}{2} = 6 \cdot 10^{-3}$$

$\Delta\Omega$ angle solide défini par l'ouverture du cylindre de Faraday figure 23.

La figure 24 représente le cylindre de Faraday F_2 .

Il est à signaler que le porte-préparation est monté sur un flasque isolant ce qui permet de le relier à la masse à travers un galvanomètre sensible et de déterminer la fraction du faisceau incident absorbée par l'ensemble cristal porte-préparation. La préparation est placée au fond d'un tube T figure 22 ce qui a pour but de diminuer l'émission secondaire.

2.2. DIFFRACTEUR D'ENERGIE MOYENNE.

=====

Pour le diffracteur décrit en 2.1. le seuil inférieur d'utilisation est de 15 KeV. En-dessous de cette valeur l'ouverture du faisceau est trop grande, mais il faut surtout signaler l'importance des couches adsorbées qui existent toujours à la surface des cristaux dans un vide de l'ordre de 10^{-4} mm Hg. Or, pour des énergies de 10 KeV la pénétration des électrons est de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de ces couches. Pour ce diffracteur destiné à fonctionner entre 10 KeV et 1 KeV l'utilisation de l'ultra-vide s'imposait par conséquent. Ce diffracteur est comme celui prévu pour les fortes énergies à axe vertical, la technologie est néanmoins très différente. La figure 25a en donne une vue d'ensemble, en b est représenté le schéma de l'appareil.

2.2.1. Enceinte et groupe de pompage.

L'enceinte a été exécutée au Laboratoire, elle est réalisée en acier inoxydable type NS.22 S.

Les assemblages sont effectués par des brides planes, l'étanchéité étant assurée par des joints en fil d'aluminium 99,99. ($\varnothing$ 1 mm)

Les passages de courant sont du type verre métal et l'ensemble est étuvable.

Le groupe de pompage est constitué par deux pompes à absorption qui permettent de réaliser dans l'appareil un vide primaire de l'ordre de $5 \cdot 10^{-4}$ mm Hg, le vide secondaire est réalisé par une pompe ionique au titane ayant une vitesse de pompage de 200 l/s. Le vide limite obtenu dans cet appareil est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-10}$ mm Hg. L'appareil est équipé d'un système permettant l'admission d'argon sous faible pression figure 26 pendant le bombardement ionique.

La vanne papillon V_2 permet de diminuer suffisamment la conductance entre enceinte et pompe ionique, durant le régime d'admission d'argon, pour éviter de saturer la pompe en argon. Sur la figure 27 ont été représentés les spectres des pressions résiduelles effectués avec un analyseur de gaz quadripôle ~~EAT:en a~~, vanne ouverte pression totale 10^{-8} mm Hg en b, vanne fermée la pression totale est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-7}$ mm Hg dans la pompe mais on a fait une admission d'argon dans le compartiment aval, où il règne une pression totale de l'ordre de 10^{-5} mm Hg.

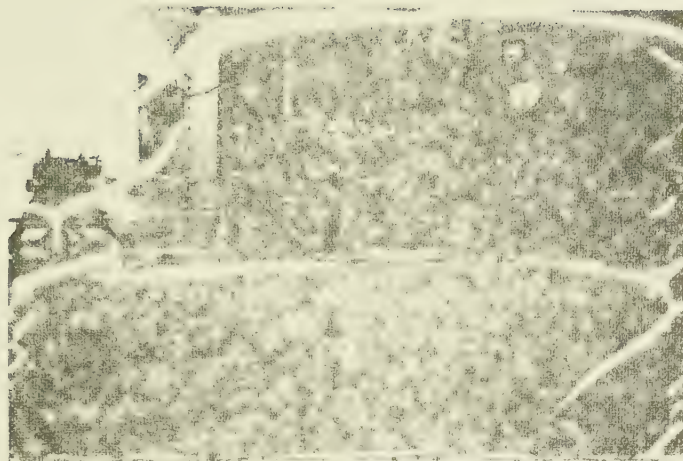
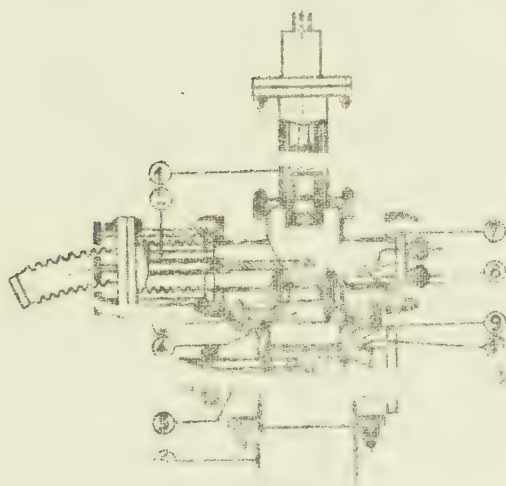


fig. 25 a



1 Canon

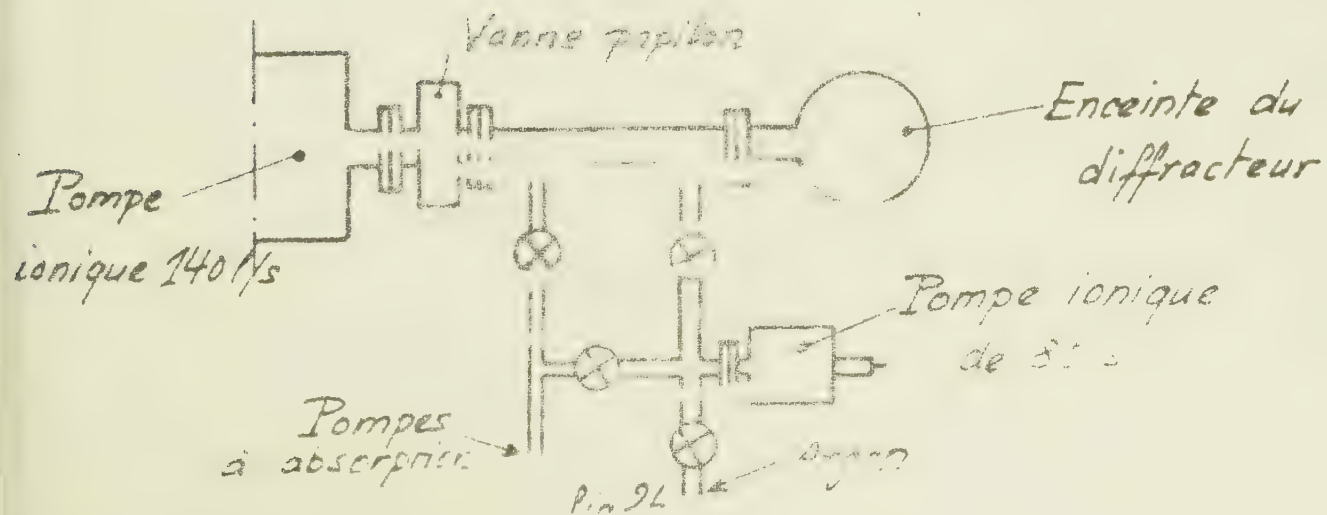
3-4 Plaques déflectrices

5 Cylindre de Faraday

9-10 Filtre de vitesse

11 Ecran d'observation

fig. 25 b





↑
18 28 40

Fig. 27a

↑ ↑ ↑ ↑
18 20 28 40

Fig. 27b

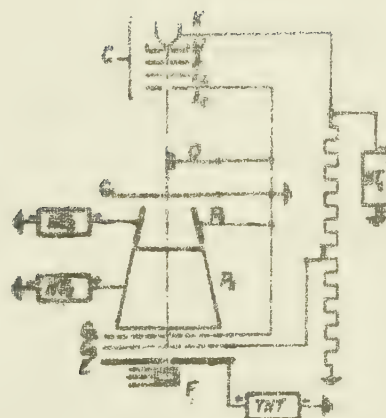


Fig. 28

2.2.2. Canon à électrons et dispositif de mesure des intensités électroniques diffractées.

Le schéma électrique de ce diffracteur est représenté sur la figure 28 .

Le canon à électrons est du type triode suivi d'une lentille électrostatique symétrique. C'est un canon qui provient d'un tube cathodique Tektronic type : *T 54 PMH*

Nous avons modifié la partie triode et le canon a été essayé sur l'analyseur (69) réalisé au laboratoire.

Le spot obtenu à 22 cm a une largeur à mi-hauteur de 0,5 mm à 800 Volts et de 0,2 mm à 10 KV.

La largeur du faisceau à la hauteur de l'échantillon est de l'ordre de 0,8 mm. Le faisceau d'électrons qui tombe sur l'échantillon à une intensité de l'ordre de quelques micro-ampères.

Le dispositif de mesure des intensités diffractées est constitué par un cylindre de Faraday fixe F dont l'ouverture se trouve sur l'axe du diffracteur. Un système de deux paires de plaques déflectrices P_1 et P_2 permet de dévier le diagramme de diffraction. En appliquant sur les plaques une tension adéquate on peut amener une tache quelconque dans l'orifice du cylindre de Faraday. Ce dispositif a été décrit au C.R. (70). Nous avons adopté ce dispositif vu les difficultés technologiques que pose la réalisation d'une sonde mobile dans une enceinte où règne l'ultra-vide. La réalisation d'un dispositif analogue permettant de déterminer la texture des préparations polycristallines sous 50 KV avait été réalisé

précédemment (71). Son bon fonctionnement nous a encouragé à réaliser un dispositif semblable pour les énergies moyennes.

Le bloc déflecteur est placé entre les grilles G_1 et G_2 qui font fonction de blindage électrostatique. Une grille G_3 permet de filtrer le faisceau diffracté.

L'écran d'observation E est constitué par un disque en pyrex percé en son centre dont nous avons rendu conductrice l'une des faces par projection de Cl_4 Sn. Une application de peinture argentée type Degussa²⁴² a permis après cuisson d'effectuer les connexions électriques sur le verre.

Une matière fluorescente type H 913 de Massiot-Fluor a été appliquée sur la face métallisée par sédimentation.

On photographie l'écran fluorescent au moyen d'un appareil réflex 24 x 36 muni d'un objectif de 85 mm de distance focale ouvert à $f/1,5$. Les films utilisés sont le Rayoscop et les temps de pose sont de l'ordre de 5 secondes.

Etant donné que toute déviation d'un faisceau d'électrons introduit des aberrations, nous avons vérifié la signification des mesures électrométriques en insérant entre les pièces C_p et C_F figure 25 une pièce articulée constituée par une membrane flexible figure 29.

On peut de cette façon mesurer l'intensité d'une tache (pqr) de deux façons :

- en inclinant l'axe de l'appareil grâce à la membrane flexible.
- en déviant le faisceau grâce au déflecteur électrostatique.

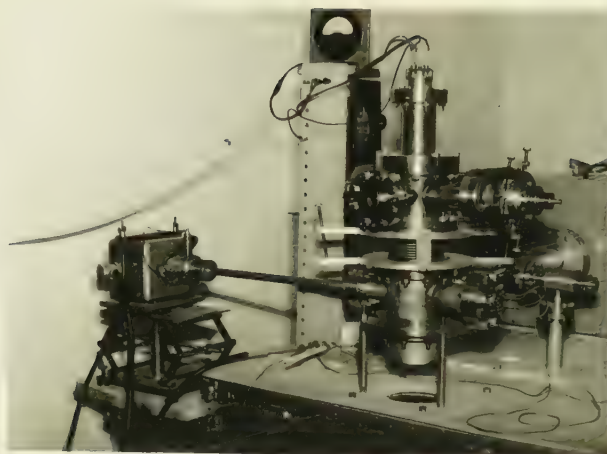


fig. 29

Les résultats obtenus par les deux méthodes concordaient à mieux que 3 %. Nous avons gardé le système à déflection électrostatique pour des raisons de simplicité.

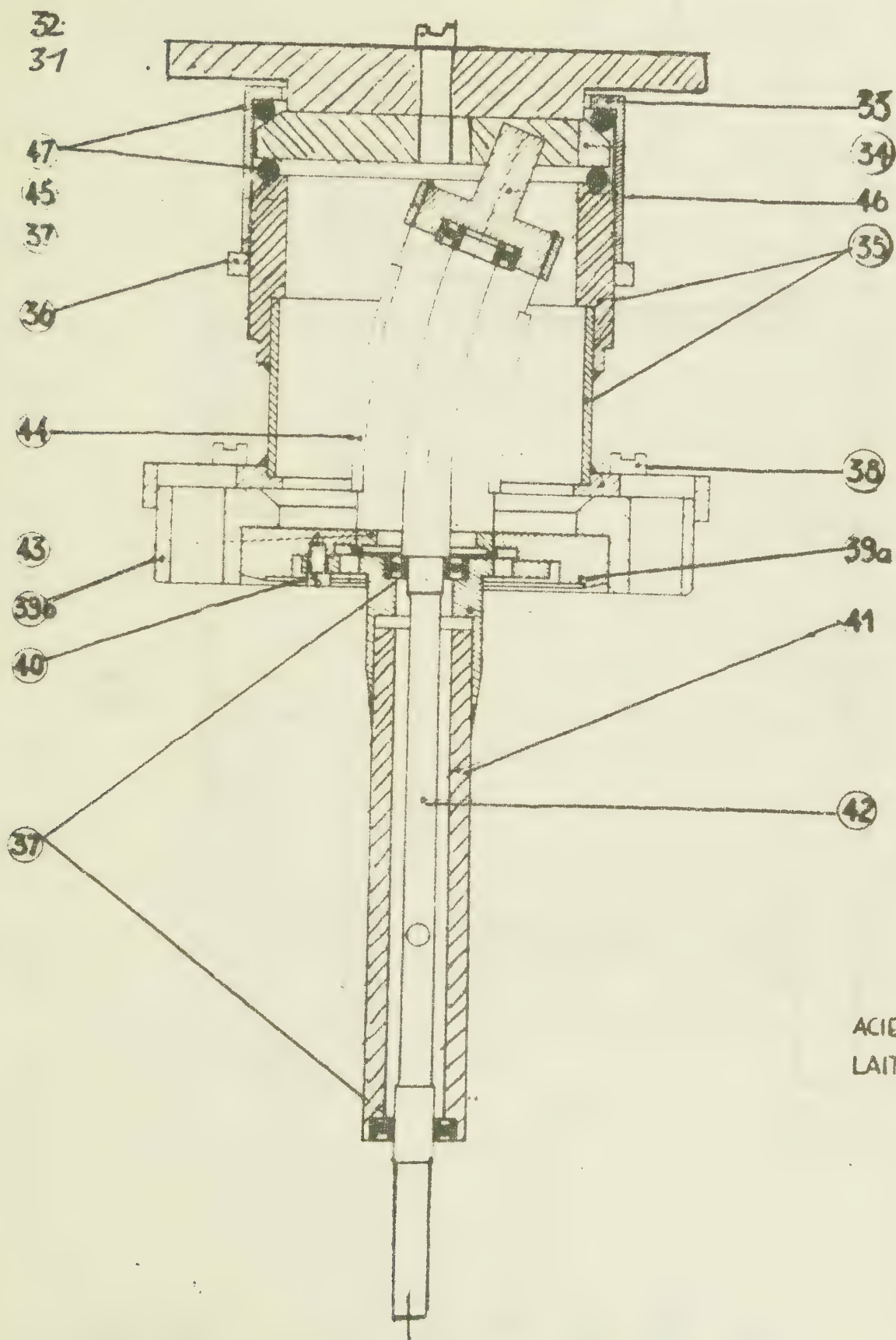
2.2.3. Porte-échantillon orientable.

Le diffracteur d'énergie moyenne étant destiné surtout à l'étude de monocristaux sous faible incidence, il était indispensable de disposer d'un porte-échantillon présentant une grande souplesse de réglage. Toutefois son utilisation sur une enceinte à ultra-vide a posé quelques problèmes mécaniques. Il est en effet difficile d'exécuter des pièces présentant des réglages fins et pouvant être chauffées à 300 °C sans risques de grippages.

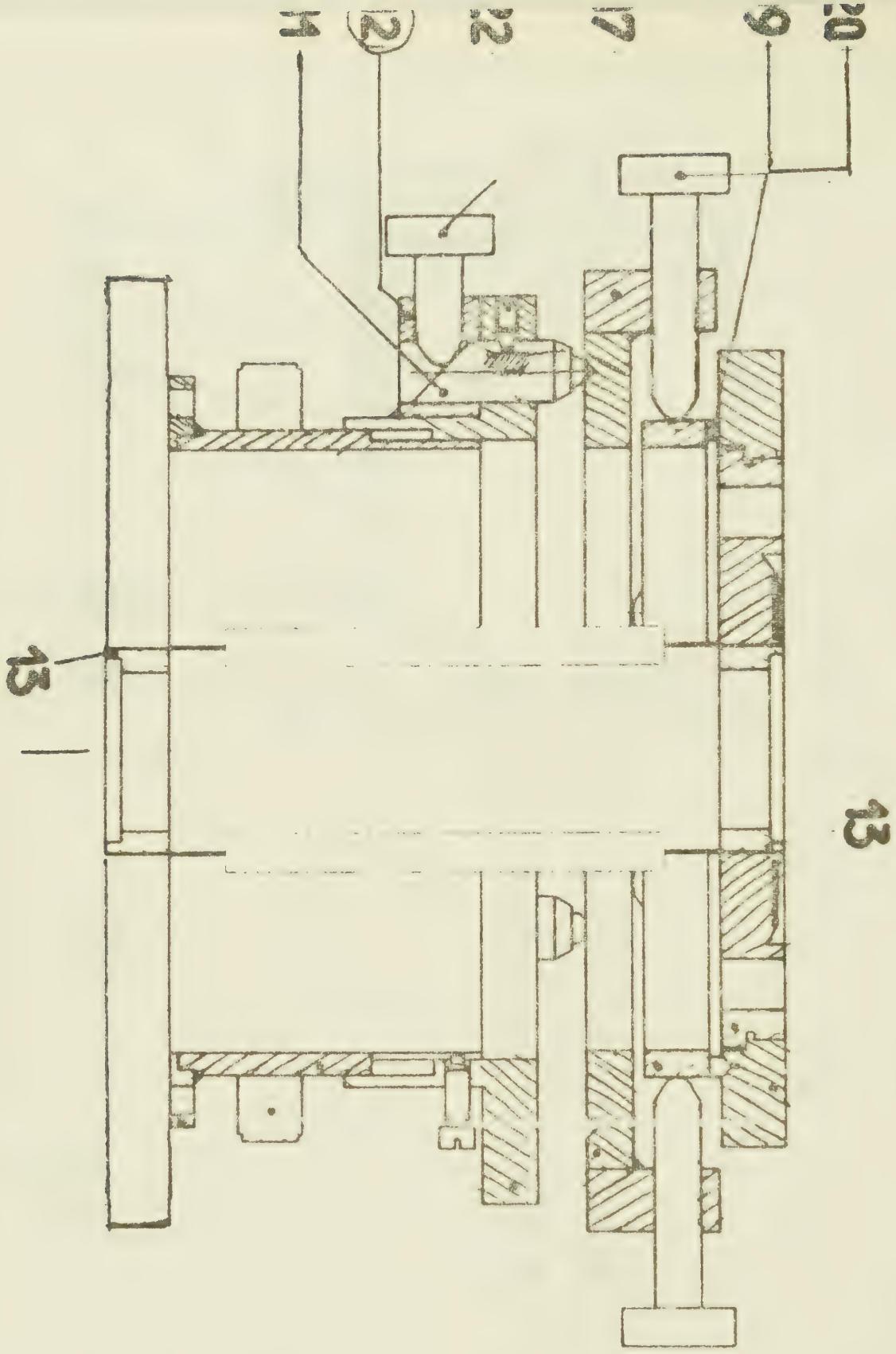
Nous avons réalisé un porte-échantillon représenté par la figure 30 a.

Sur la figure 30 b on voit le porte-échantillon démonté. Le porte-échantillon proprement dit est exécuté en acier inoxydable.

58a



ACIER INOX
LAITON



1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19 20

Les différents paliers sont constitués par des roulements à billes en acier inoxydable à chemins argentés. Une membrane plissée M_1 permet d'effectuer une rotation de 360° , la membrane M_2 permet d'obtenir les différentes translations et inclinaisons. Les pièces comportant les réglages fins sont exécutées en laiton et peuvent être démontées lors de l'étuvage. Seules restent en place les 3 vis V qui empêchent l'écrasement de la membrane M_2 sous l'effet de la pression atmosphérique. Cet appareil a été breveté (brevet C.N.R.S.) (72). On peut résumer les différents mouvements possibles :

- a.- Rotation de 360° autour de l'axe A par action sur le moletage C_1 .
- b.- Les 3 vis V_1 , V_2 et V_3 commandent des butées qui permettent d'incliner l'axe A de 15° .
- c.- L'écrou moleté C_2 permet d'obtenir une translation selon l'axe A.
- d.- Les deux chariots C_3 et C_4 permettent d'effectuer les déplacements latéraux.

Le cristal est monté sur un ruban en tantale et peut être chauffé par effet Joule. Sa température est contrôlée par un thermocouple Pt - Pt-Rh.

2.2.4. Canon à ions.

Pour obtenir une surface propre, certains éléments nécessitent un traitement dans le diffracteur. Un bombardement ionique suivi d'un recuit est en général suffisant. Nous avons

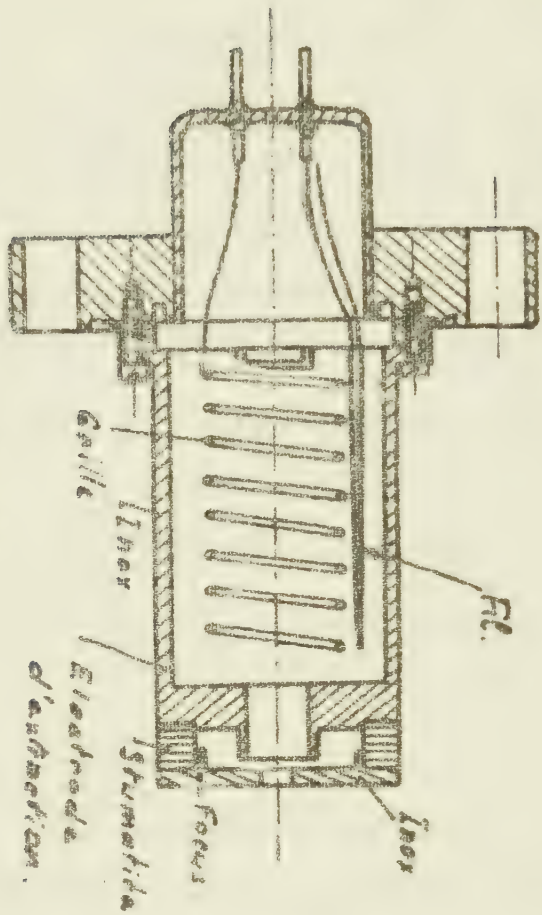
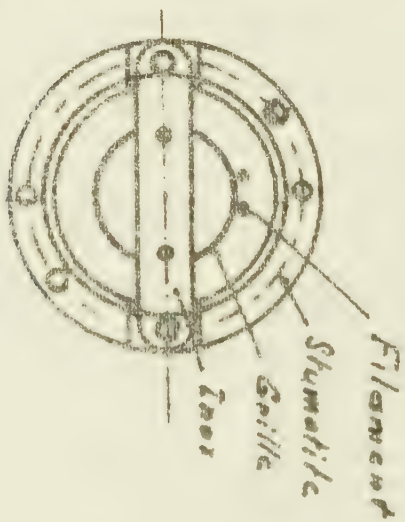


Fig. 31



réalisé un canon à ions qui peut produire un courant d'ions argons de quelques microampères sous 500 Volts. Le schéma électrique de ce canon est représenté par la figure 31.

Le courant électronique ionisant s'établit entre le filament et la grille. Le filament a été désaxé pour éviter les projections de tungstène sur l'échantillon. Les électrodes 3 et 4 constituent une lentille électrostatique qui permet de focaliser le faisceau d'ions.

Dans le tableau suivant sont indiqués deux régimes de fonctionnement.

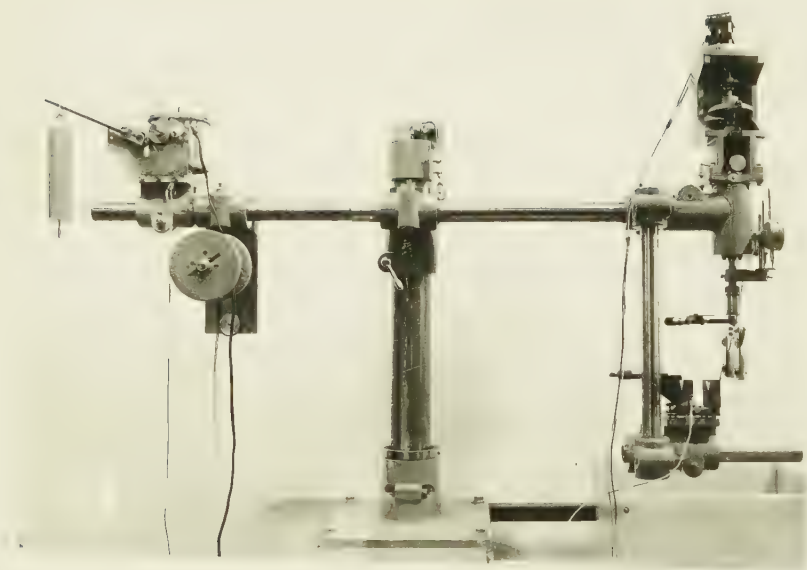
Vg	Ig	Vext.	Vfoc.	Iion
60V	5mA	- 3,5V	-100V	10 μ A
150V	5mA	- 3,8V	-150V	15 μ A

2.3. TRONCONNEUSE PAR ELECTRO-ÉROSION.

Pour pouvoir couper les faces cristallographiques à étudier avec le minimum de perturbations du réseau, nous avons réalisé une machine à électro-érosion. Une visite au Laboratoire du Professeur DUCROS à Grenoble m'a été très profitable dans ce but.

La figure 32a donne une vue d'ensemble, en b est représenté le schéma de l'appareil.

Un fil en cuivre de $\varnothing$ 0,3 mm est déroulé à raison de 0,25 cm/mn. Ce fil passe sur un étrier E. Le cristal est fixé sur un appareil d'orientation décrit par BOND (73).



La face cristallographique à tailler a été réglée préalablement sur un spectromètre à Rayons X parallèlement à la base B de l'appareil d'orientation. L'étrier E et l'appareil d'orientation sont immergés dans un bain de kérosène. On applique entre le fil de cuivre et le cristal une différence de potentiel continu de 400 Volts.

Un servo-mécanisme commande l'avance de l'étrier de façon à maintenir l'étincelle à intensité constante. Cette méthode permet d'obtenir une coupe avec de très faibles perturbations de la structure du cristal. Pour une coupe d'un cristal d'or par exemple, une attaque de lmn à l'eau régale a suffi pour éliminer les couches superficielles perturbées constituées surtout par un dépôt de carbone. Il a fallu effectuer 7 à 8 attaques pour obtenir les mêmes résultats sur une face d'un cristal d'or obtenu par abrasion.

Si le réglage d'une face cristallographique peut être fait avec beaucoup de précisions sur un spectromètre à Rayons X, il est très difficile de régler le parallélisme entre le fil F et la base de référence B.

Sur la figure 33 est représenté le dispositif utilisé pour faire ce réglage.

Deux vis, V_1 et V_2 montées sur un support isolant permettent de matérialiser le fil de cuivre. Le contact entre vis et fil est contrôlé par le passage d'un courant alternatif à l'aide d'un oscilloscope. Par action sur la vis micrométrique V_m on règle le contact simultané entre les vis V_1 , V_2 et la base B, ce qui confirme le parallélisme recherché. Ce réglage

ge peut être effectué à mieux que 1 minute d'angle.

Nous pouvons admettre qu'il est possible de tailler dans les meilleures conditions un plan cristallographique à une dizaine de minutes d'angles près.

2.4. MESURE DES EPAISSEURS.

=====

La détermination des épaisseurs des films évaporés a été faite par la méthode interférométrique et par pesée sur une balance sensible au microgramme.

Ces méthodes sont peu précises pour des épaisseurs inférieures à 100 Å.

Nous avons dans chaque cas déterminé la dimension des cristallites à partir de la largeur des raies. La largeur des raies de Debeye - Scherer est liée à la dimension des cristallites par la relation de Stokes et Wilson (74)

$$D = \frac{k\lambda}{\beta} \quad 33$$

k est une constante qui peut varier entre 0,8 et 1

λ est la longueur d'onde associée aux électrons

β est la largeur angulaire de la raie à mi-hauteur.

C H A P I T R E III

=====

Résultats expérimentaux.

3.1. ETUDE PRELIMINAIRE DE QUELQUES CRISTAUX DANS LA GAMME

DES ENERGIES MOYENNES.

L'étude du facteur de diffusion atomique pour des électrons d'énergie comprise entre 10000 et 2500 Volts m'a conduit à construire un appareil spécial et examiner la diffraction des électrons de cette gamme d'énergie, que je désignerais comme électrons d'énergies moyennes, par différents cristaux. Très peu de recherches ont été faites avec des électrons d'énergie moyenne parce que étant assez pénétrant ils ne renseignent pas suffisamment sur les couches superficielles comme le font les électrons lents dont l'énergie est inférieure à 500 eV, ils nécessitent pourtant l'emploi de la technique de l'ultra-vide plus élaborée et plus coûteuse que celle employée dans le cas des électrons rapides.

3.1.1. Détermination de l'énergie minima permettant d'obtenir des diagrammes par transmission.

Vu l'intérêt des études sur les préparations polycristallines étudiées par transmission, il nous a paru intéressant

de déterminer l'énergie minima pour laquelle des diagrammes de Debeye - Scherer peuvent être obtenus. Nous avons étudié pour cela des dépôts de MgO sur films de carbone.

La figure 34 représente la photo du diagramme obtenue sur l'écran fluorescent avec des électrons de 3500 Volts.

L'épaisseur du dépôt de MgO était de l'ordre de $40 \text{ \AA}$. Nous n'avons jamais pu obtenir de diagramme à une énergie inférieure.

Des essais similaires effectués sur des films d'or ont montré que le seuil, dans ce cas, était bien plus élevé, de l'ordre de 6000 Volts. Des diagrammes avec Pt ont été obtenus dans cette gamme d'énergie par TRILLAT (75)

3.1.2. Etude des diagrammes de diffraction de cristaux de NaCl entre 800 et 2300 Volts.

Nous avons utilisé des cristaux de NaCl irradiés ce qui rend le clivage plus facile permettant ainsi de renouveler la face avant chaque expérience.

Il pourrait sembler étrange que nous ayons utilisé des substances isolantes ayant la réputation de se prêter mal à l'étude par diffraction électronique à cause des charges électriques qu'elles éliminent difficilement, mais vu l'énergie des électrons nous sommes loin du seuil en-dessous duquel le cristal se charge qui est de l'ordre de 50 Volts (76).

Sur la figure 35 sont représentés deux diagrammes obtenus sur la face (100) du NaCl, la trace du plan d'incidence étant suivant $[110]$ (Toutes ces figures ont été obtenues en

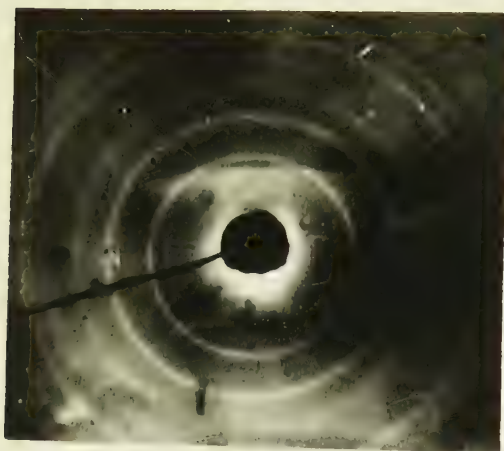


fig 34

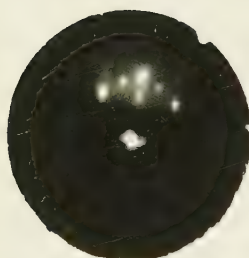


fig 35

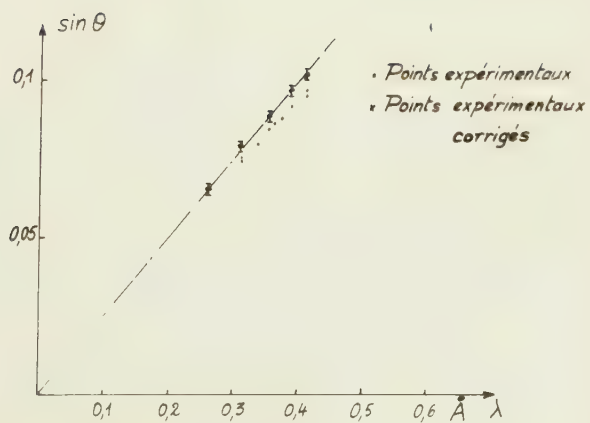


fig 36

photographiant l'écran fluorescent).

Ces diagrammes permettent de tracer la courbe de $\sin \theta$ en fonction de la longueur d'onde associée aux électrons.

En l'absence de dispositif post-accélérateur cette courbe devrait être une droite, mais le champ électrique uniforme qui existe entre les grilles planes et parallèles dévie les trajectoires électroniques suivant des paraboles. Sur la figure 36 nous avons représenté la courbe expérimentale. Les points expérimentaux se trouvent en-dessous de la droite théorique. On peut corriger cette déviation, en tenant compte de la remarque précédente, les points se rangent alors, aux erreurs expérimentales près, sur la droite théorique. Dans ce cas les électrons diffractés suivent bien la loi de Bragg.

La distance des taches à l'équateur permet de calculer la distance des noeuds de la rangée du réseau primitif qui lui est normale. En comparant le paramètre de cette rangée avec l'équidistance des plans réticulaires réflecteurs on peut déduire l'indice de réfraction pour les électrons, donc le potentiel interne du cristal. Nous avons trouvé pour des électrons de 800 Volts : $v_e = 7,9 \text{ Volts} \pm 0,7$.

Il est à signaler que lors de ces expériences nous avons pu mettre en évidence des diagrammes de Kikuchi à 90° du faisceau incident, en plaçant convenablement un écran fluorescent figure 37.



fig. 37

3.1.3. Comparaison des diagrammes de diffraction obtenus à 1500 Volts avec des cristaux de LiF, NaCl et PbS.

Nous avons étudié des cristaux formés d'atomes de masse atomique croissante tels que LiF, NaCl et PbS avec des électrons d'une même énergie (1500 eV) (77). Ces cristaux ayant une absorption très différente se comportent différemment. Ainsi avec des cristaux de LiF très peu absorbants nous avons obtenu des diagrammes de diffraction caractéristiques d'un réseau à trois dimensions.

Dans le cas de la galène au contraire le faisceau d'électrons est fortement absorbé. Seules les couches atomiques superficielles sont concernées. Les diagrammes observés sont ceux donnés par un réseau à deux dimensions; les taches se déplacent de façon continue sur l'écran d'observation si on change l'incidence du faisceau sur le cristal.

Dans le cas du sel gemme qui présente une absorption intermédiaire nous avons pu mettre en évidence les deux types de diagrammes. L'évolution des taches mobiles avec l'angle d'incidence a été filmée.

3.2. MESURE DES INTENSITES ELECTRONIQUES DIFFRACTEES.

=====

Différentes méthodes physiques permettent la mesure des intensités électroniques diffractées; on peut les classer en deux catégories :

- Méthodes directes
- Méthodes indirectes

3.2.1. Méthodes directes.

Par ces méthodes on mesure directement l'intensité électrique des faisceaux diffractés. C'est grâce à ces mesures qu'on peut accéder aux valeurs absolues des facteurs de diffusion.

Nous distinguons :

- La méthode du cylindre de Faraday : qui a été décrite au paragraphe 2.1.3.
- La méthode du multiplicateur d'électrons : les multiplicateurs d'électrons ayant un facteur d'amplification de 10^6 fournissent en sortie un courant notable. Le problème des liaisons est beaucoup moins délicat que dans le cas du cylindre de Faraday. Ce n'est que très récemment que des multiplicateurs d'électrons d'un encombrement réduit ont été développés. (Bendix)

3.2.2. Méthodes indirectes.

Dans ces méthodes on mesure l'effet produit par les électrons diffractés qui peut être :

- une ionisation de certains cristaux (méthode des scintillateurs)
- un effet photochimique (plaque photographique).

Les intensités des électrons diffractés peuvent être déterminées par la photométrie d'une plaque photographique. La densité optique d'une plaque photographique est fonction du nombre d'électrons qui l'impressionnent. Un étalonnage de la couche sensible par un cylindre de Faraday permet de passer aux intensités électroniques.

L'avantage de cette méthode c'est la simultanéité de l'enregistrement des intensités. L'inconvénient majeur de cette méthode réside dans le fait que la région dans laquelle il existe une relation linéaire entre densité optique et nombre d'électrons incidents est très faible. On ne peut, par exemple, pas comparer l'intensité du faisceau primaire à celle d'un faisceau diffracté. Ce rapport étant de l'ordre de 10^{-3} .

3.2.3. Méthodes utilisées dans le présent travail.

- Dans le cas des électrons d'énergie moyenne nous avons utilisé la méthode électrométrique, parce qu'on ne peut utiliser commodément des plaques dans l'ultra-vide et parce qu'il y a un petit nombre de réflexions.
- Dans le cas des électrons rapides nous avons combiné la méthode photographique avec la méthode électrométrique; ce

qui permet d'allier rapidité de la mesure et détermination des valeurs absolues. Or, dans un milieu contaminant (vide de 10^{-4} mm Hg) comme celui qui existe dans les diffracteurs de fortes énergies la rapidité des mesures est un facteur important.

Pour pouvoir déduire du noircissement d'une plaque photographique les intensités des réflexions il faut prendre plusieurs précautions :

- Il faut choisir les temps d'exposition et de développement de façon qu'il existe pour toutes les densités optiques ($D = \log \frac{I_0}{I}$) d'un diagramme une relation linéaire avec le nombre des électrons incidents. $D = K n e$ (34)

n = nombre d'électrons incidents

e = charge de l'électron

Il faut ensuite déterminer le facteur K de la relation (34). Cet étalonnage se fait à l'aide du cylindre de Faraday. Pour déterminer les temps d'exposition de la plaque photographique nous avons procédé de la façon suivante :

En obturant successivement les trois quarts d'une plaque photographique (type Lactate tons noirs, Guilleminot) nous avons impressionné la plage découverte avec les faisceaux diffractés, par une préparation polycristalline d'aluminium figure 38.

Chaque plaque a été exposée différemment.

Il suffit de vérifier que les rapports $\frac{I_{pqr}}{I_{111}}$ soient égaux pour les 4 plages, ce qui permet d'admettre que toute la gamme des densités optiques de la plaque est liée linéairement à l'intensité électronique incidente.

Il suffit ensuite de vérifier que les densités optiques minima et maxima d'une plaque donnée soient comprises dans l'intervalle ainsi déterminé. Le développement a été effectué à γ_{∞} le révélateur étant maintenu à température constante ($18^{\circ}\text{C} \pm 0,5$).

3.3. INTERPRETATION DES MESURES D'INTENSITES.

=====

Nous avons établi au chapitre I les relations qui lient l'intensité diffractée I_{pqr} aux facteurs de diffusion atomiques. Les relations sont différentes suivant que la matière diffusante est monocristalline ou polycristalline, mais nous avons toujours dans le cas de la théorie cinématique :

$I_{pqr} = g(f^2)$. Au-dessus d'une certaine dimension des cristallites il faut appliquer la théorie dynamique et dans ce cas : $I_{pqr} = g(f)$.

Il faut donc établir un critère qui permet de prévoir quelle théorie utiliser.

Si nous considérons la relation (23)

$$\frac{I_{pqr}}{I_0} = \lambda^2 \left| \frac{F_{pqr}}{\Omega_p} \right|^2 A_3^2$$

Pour des épaisseurs croissantes cette relation conduit à une impossibilité. En effet I_{pqr} peut devenir plus grand que I_0 . Ceci s'explique, car pour $A_3 > A_c$ (A_c épaisseur critique) la théorie cinématique n'est plus applicable. On peut donc formuler le critère suivant : (34)

$$\text{Si} \quad \lambda \frac{F_{pqr}}{\Omega_D} \cdot A_c = 1 \quad (34)$$

il faut appliquer la théorie dynamique.

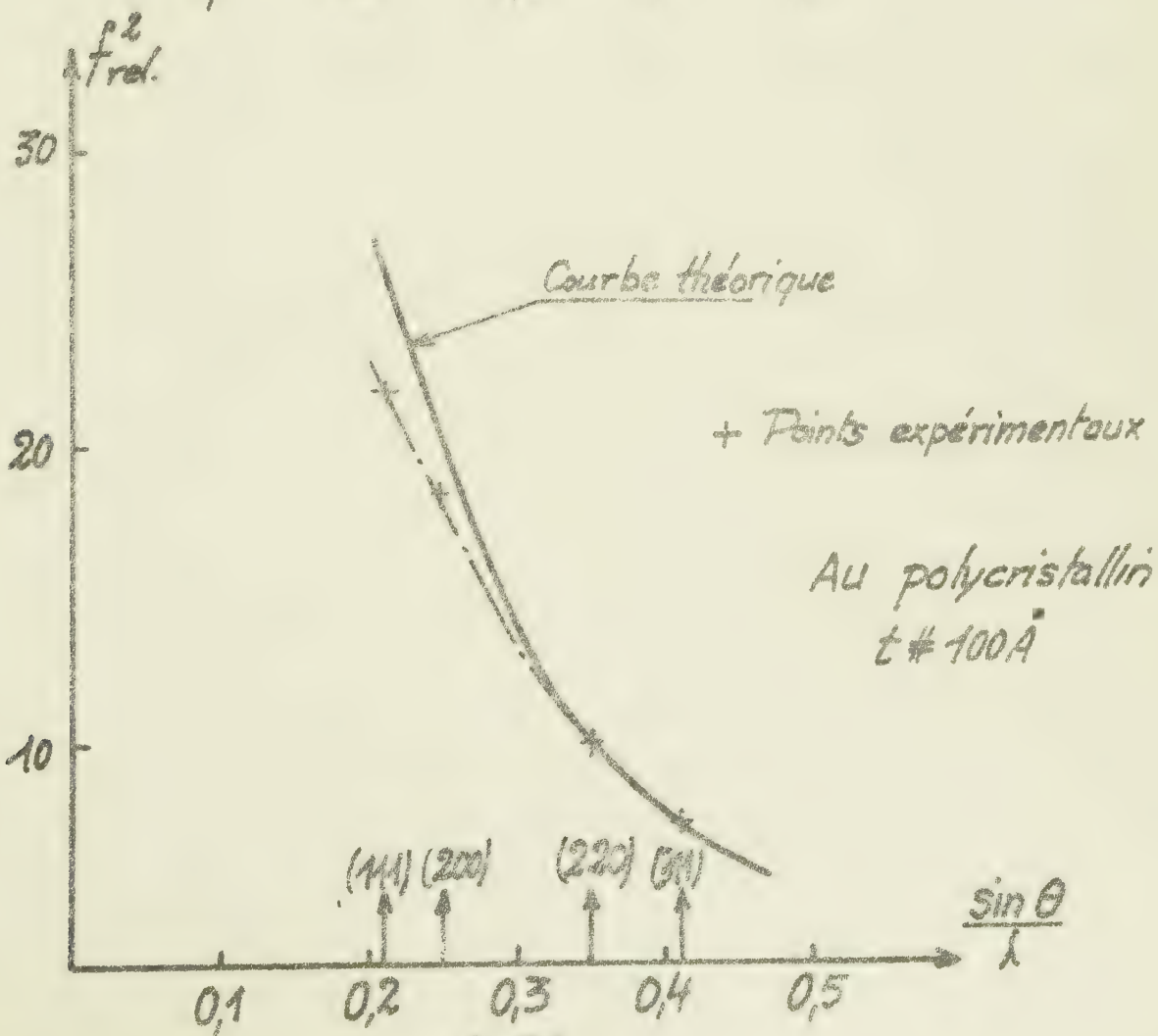
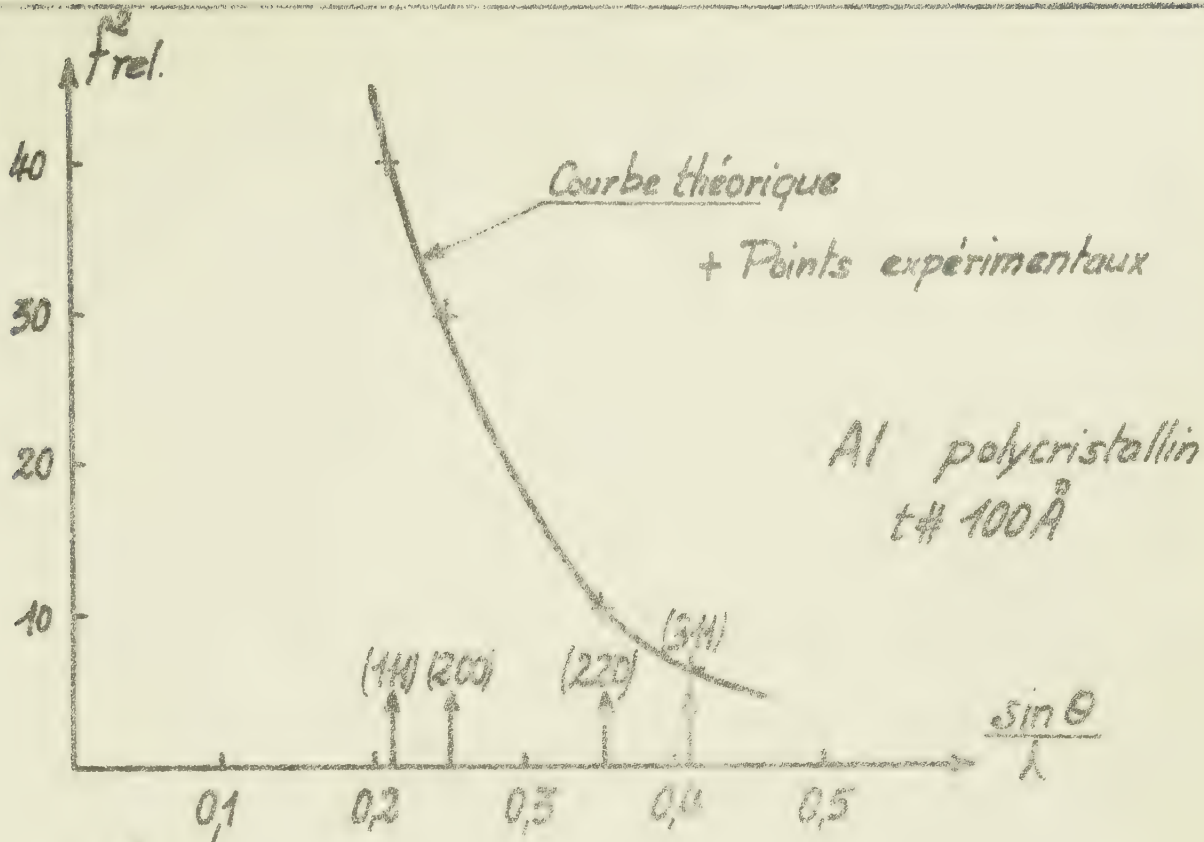
Etant donné les imprécisions sur la mesure des épaisseurs et la difficulté pour déterminer $\frac{I_{pqr}}{I_0}$ notamment dans le cas des cristaux ^{absorbants} il est bon de comparer la pente de la courbe expérimentale de l'intensité I_{pqr} en fonction de $\frac{\sin \theta}{\lambda}$ à celles des courbes théoriques, cinématiques et dynamiques. L'écart sera surtout important pour les faibles ordres de diffraction (faibles valeurs de $\frac{\sin \theta}{\lambda}$). En effet la relation (34) peut s'écrire :

$$A_c = \frac{\Omega_P}{\lambda \cdot F_{pqr}} \simeq \frac{\Omega_P}{\frac{\sin \theta}{\lambda}}$$

Pour les petits angles nous pouvons avoir un accord avec la théorie dynamique, alors qu'aux grands angles la théorie cinématique peut être parfaitement appliquée.

Nous avons vérifié ces conditions sur des préparations d'Al et d'Au d'une épaisseur de 100 Å environ. Les résultats obtenus sont représentés sur les courbes de la figure 38.

Les tableaux des mesures figurent sur la page 75.



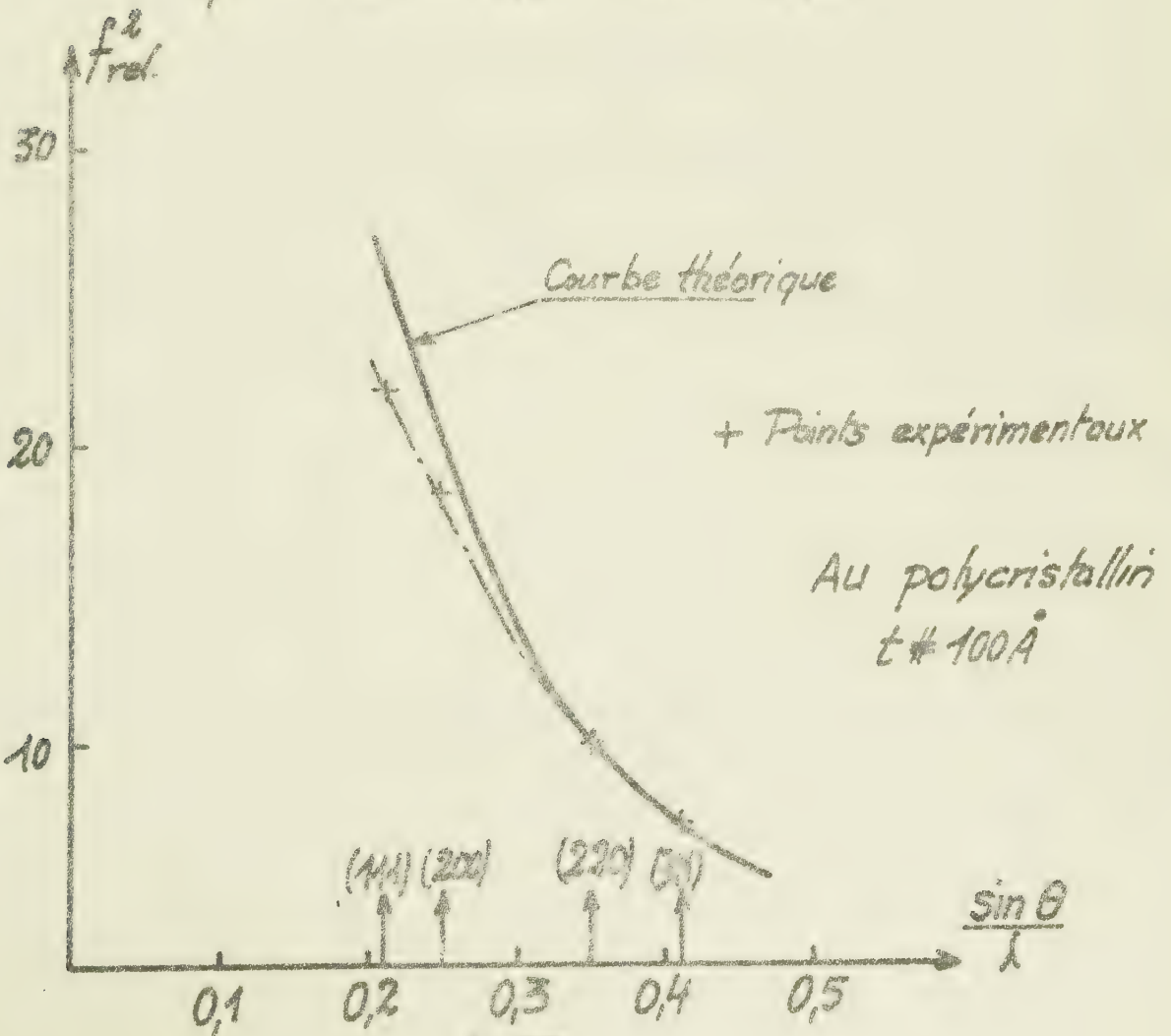
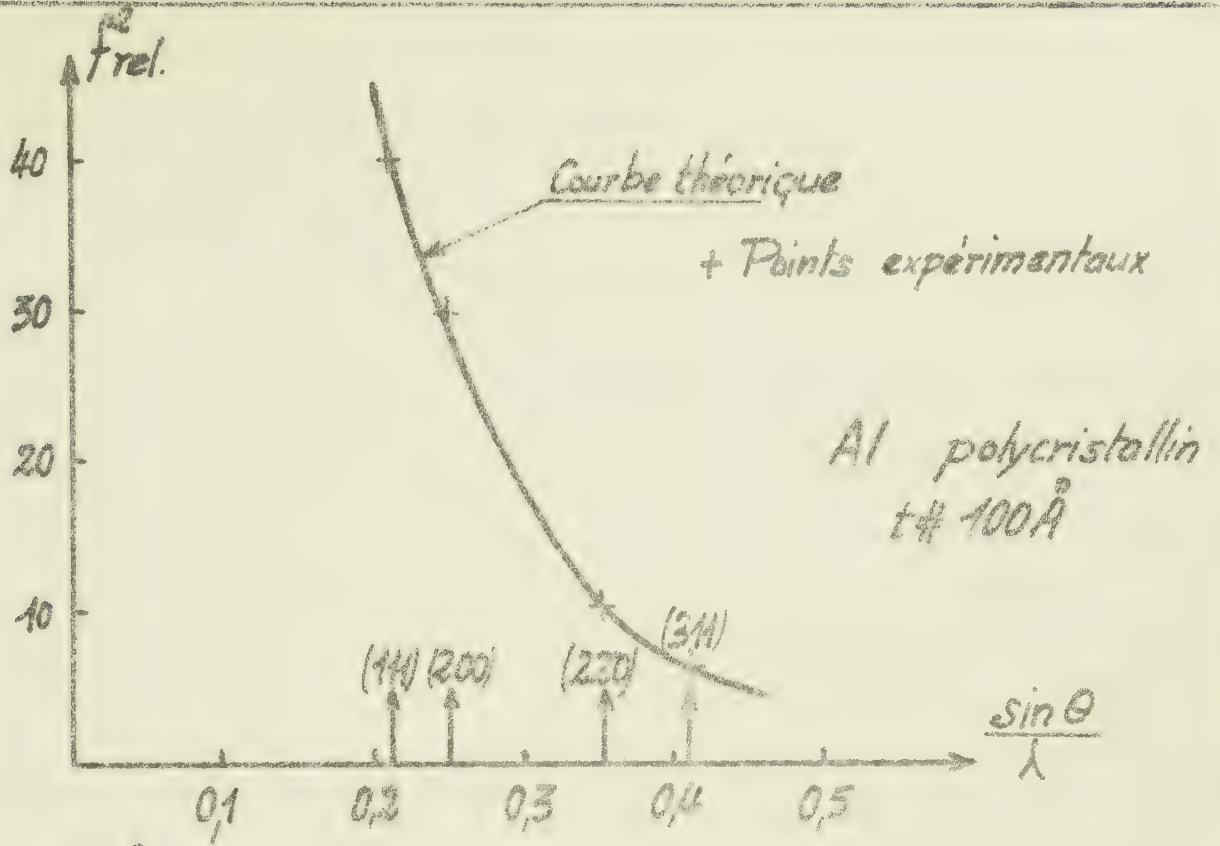


Fig 38

ALUMINIUM polycristallin $t = 100 \text{ \AA}$

=====

Indices	d_{A}°	I_{par} en A $\times 10^{-14}$	Fond continu en A $\times 10^{-13}$	P	$\left(\frac{\sin \theta}{\lambda}\right)^2$	K $\times 10^{-3}$	f_{exp}^2	f_{th}^2
(000)		27000	6,0					
(111)	2,34	19		8	0,046	5,75	40	45
(200)	2,02	8	2,8 2,4	6	0,061	10,2	30	30
(220)	1,43	2,6	2,0 2,0	12	0,124	10,4	10	10
(311)	1,22	2,4	1,3	24	0,163	7,0	6,2	6,2

OR polycristallin $t = 100 \text{ \AA}$

=====

Indices	d_{A}°	I_{par} en A $\times 10^{-14}$	Fond continu en A $\times 10^{-15}$	P	$\left(\frac{\sin \theta}{\lambda}\right)^2$	K $\times 10^{-3}$	f_{exp}^2	f_{th}^2
(000)		2500	11,6					
(111)	2,34	3,1		8	0,046	5,75	22	25
(200)	2,03	1,3	4,8 4,0	6	0,061	10,2	16,3	20
(220)	1,44	0,8	2,4	12	0,121	10,1	10	10
(311)	1,23	0,88	1,2	24	0,165	6,9	7,5	7

Légende des tableaux.

p = multiplicité des plans (pqr)

$K = \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 \cdot \frac{1}{p}$ est le facteur par lequel il faut multiplier I_{mpqr} :

$I_{mpqr} = I'_{pqr}$ (voir formule 2.1.) pour obtenir f_{exp}^2 relatif, qui est directement comparable à f_{th}^2 , corrigé du facteur de Debeye.

Nous avons égalé les valeurs relatives f_{exp}^2 et f_{th}^2 pour la réflexion (220).

On remarque que dans le cas de l'aluminium pour une épaisseur du film de $100 \text{ \AA}$ et une tension d'accélération de 50 KV la théorie cinématique est encore applicable, pour le film d'or de même épaisseur par contre il faut employer la théorie dynamique. Si nous considérons l'équation (34) on obtient pour l'épaisseur critique A_c de l'aluminium:

$$A_c = \frac{\Omega_p}{\lambda \cdot F_{pqr}} = \frac{66 \cdot 10^{-24}}{0,07 \cdot 10^{-8} \cdot 8,8 \cdot 10^{-8}} \neq 140 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$$

ce qui correspond à environ $140 \text{ \AA}$.

Pour l'or on obtient :

$$A_c \neq 45 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$$

L'épaisseur critique pour l'or est donc dans les $45 \text{ \AA}$ pour la réflexion (111), il est donc normal que les valeurs de I_{111} et I_{200} soient déjà influencées par la théorie dynamique.

Si nous calculons l'épaisseur critique pour la réflexion I_{311} on obtient :

$$A_c \neq 90 \text{ \AA}$$



La théorie cinématique est donc encore vérifiée pour la réflexion (311).

3.4. ETUDE DES PREPARATIONS POLYCRISTALLINES D'ALUMINIUM PAR TRANSMISSION.

3.4.1. Obtention des films minces.

Les échantillons minces d'aluminium ont été obtenus par évaporation d'aluminium de pureté 99,99% sous un vide de l'ordre de 10^{-5} mm Hg. Les vapeurs d'aluminium ont été recueillies sur une grille en cuivre recouverte d'un film de formvar-carbone. Parallèlement nous avons recueilli les vapeurs d'aluminium, d'une part sur une plaque de verre afin de pouvoir déterminer l'épaisseur du dépôt par interférométrie (78), d'autre part sur un disque d'aluminium taré, ce qui a permis de déterminer l'épaisseur du film par pesée sur une électro-balance Cahn. On peut admettre une incertitude de $\pm 15\%$ sur les déterminations des épaisseurs des films. Nous avons effectué des mesures sur des échantillons d'épaisseurs différentes respectivement de l'ordre de 60, 190 et 470 Å.

3.4.2. Etude des intensités diffractées en valeurs relatives.

Les échantillons d'une épaisseur de 60 et 190 Å ont été étudiés avec des électrons incidents de 50, 30 et 15 KV. La préparation de 470 Å n'a été étudiée qu'à 50 KV.

3.4.2.1. Préparation d'aluminium (ép. = 60 Å)

Nous avons déterminé d'après la relation (33) la grosseur des cristallites : on trouve 50 Å.

D'après la relation (34) on peut calculer les épaisseurs critiques des échantillons pour la réflexion (111) en fonction de l'énergie :

$$\begin{array}{llll} A_c & = & 140 \text{ Å} & \text{pour } V = 50 \text{ KV} \\ A_c & = & 110 \text{ Å} & \text{pour } V = 30 \text{ KV} \\ A_c & = & 75 \text{ Å} & \text{pour } V = 15 \text{ KV} \end{array}$$

Les intensités diffractées par cette préparation devraient donc suivre la théorie cinématique même à 15 KV.

Pour pouvoir comparer les intensités I_{pqr} à f_{th}^2 nous avons procédé comme au paragraphe 33.

Sur la figure 40 sont représentés les diagrammes obtenus aux différentes tensions.



Sur la figure 4l page 80, les valeurs expérimentales sont comparées aux valeurs théoriques. On constate que la théorie cinématique est bien applicable.

3.4.2.2. Préparation d'aluminium (ép. = 190 Å)

Nous avons déterminé la grosseur des grains qui est de l'ordre de 70 Å. Sur la figure 4la, les valeurs expérimentales sont comparées aux valeurs théoriques; on constate que la théorie cinématique est encore applicable malgré la forte épaisseur du film. Nous avons ^{ensuite} fait subir à la préparation un traitement thermique qui a fait croître les cristallites à une dimension de 150 Å.

Les valeurs expérimentales obtenues sont représentées sur la figure 4la. On remarque que la théorie cinématique n'est pas satisfaite. On peut conclure que c'est la dimension des cristallites qui conditionne la théorie à employer.

3.4.2.3. Préparation d'aluminium (ép. = 470 Å)

Les valeurs expérimentales sont représentées sur la figure 4la. Dans ce cas les écarts avec la courbe théorique sont très importants. Il faut employer la théorie dynamique.

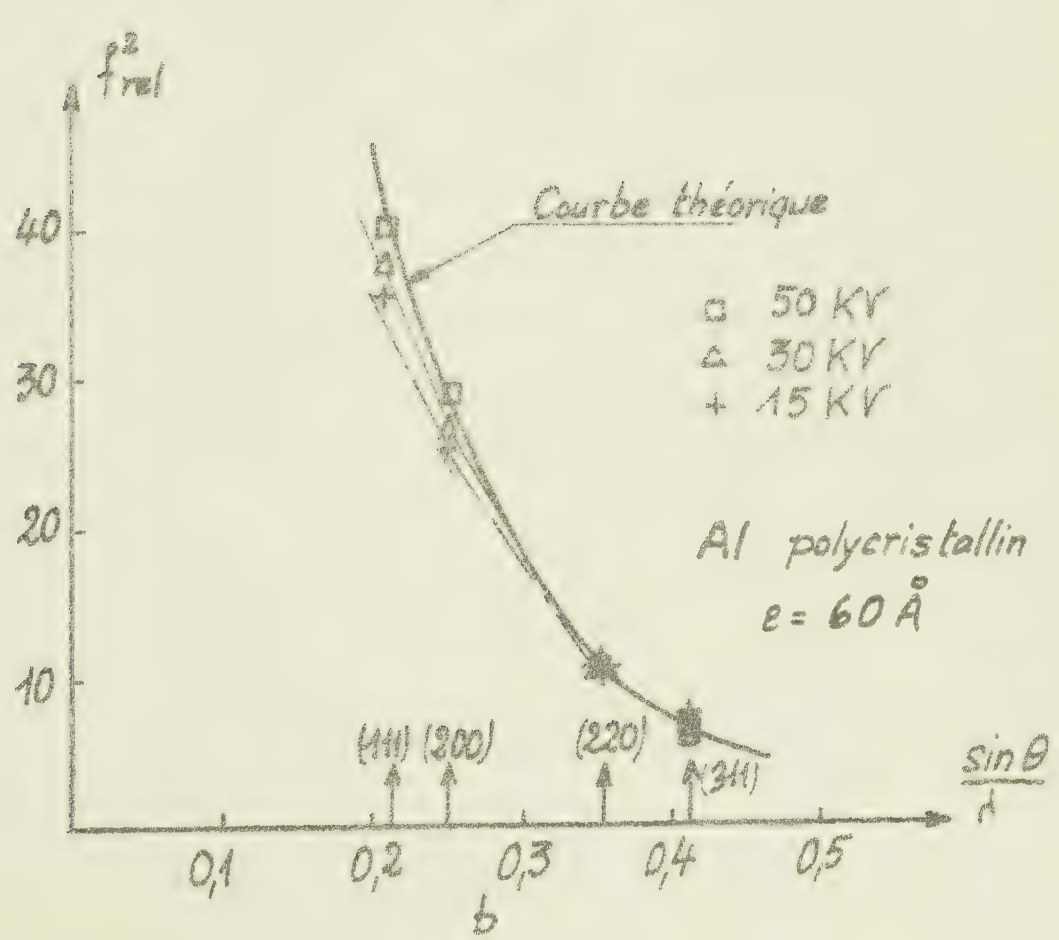
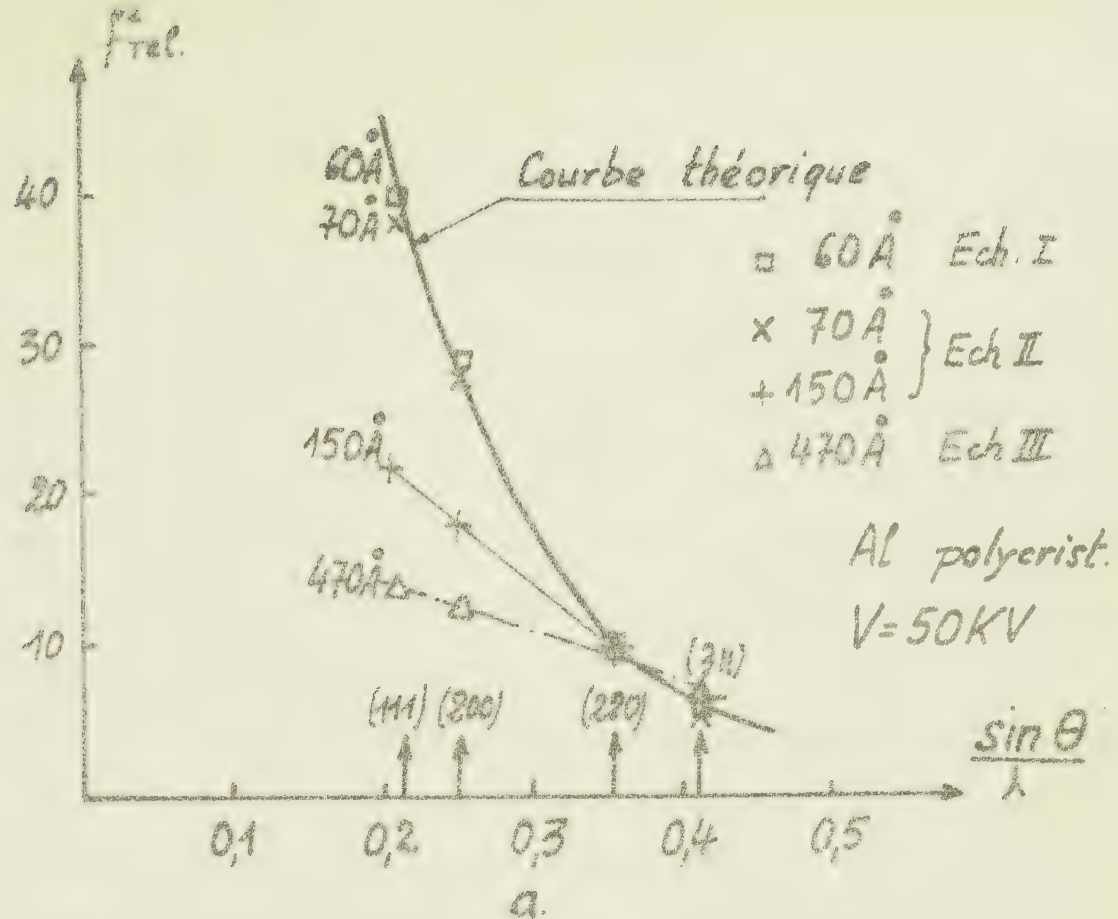


fig:

3.4.3. Répartition de l'intensité incidente entre le fond continu et la diffusion élastique.

Avant de donner les valeurs absolues des facteurs de diffusion il faut étudier la répartition de l'intensité incidente entre le fond continu (formé surtout d'électrons diffusés inélastiquement) et la fraction diffusée élastiquement. L'intensité diffusée par l'échantillon peut être classée en trois fractions:

Une partie importante du faisceau incident est diffusée inélastiquement et se trouve répartie dans le fond continu du diagramme. Une partie du faisceau incident est diffusée élastiquement et se trouve concentrée dans les anneaux de diffraction, le reste traverse l'échantillon sans perte de vitesse et constitue le faisceau direct.

L'intensité globale diffusée élastiquement est égale à la somme des intensités dans les différents anneaux de diffraction à laquelle il faut ajouter l'intensité du faisceau direct transmis. Il est à signaler que $\sum I_{pqr}$ représente quelques pour cents du faisceau direct. On peut ainsi faire le bilan énergétique:

$$I_0 = I_{ot} + \sum I_{pqr} + I_{Fc}$$

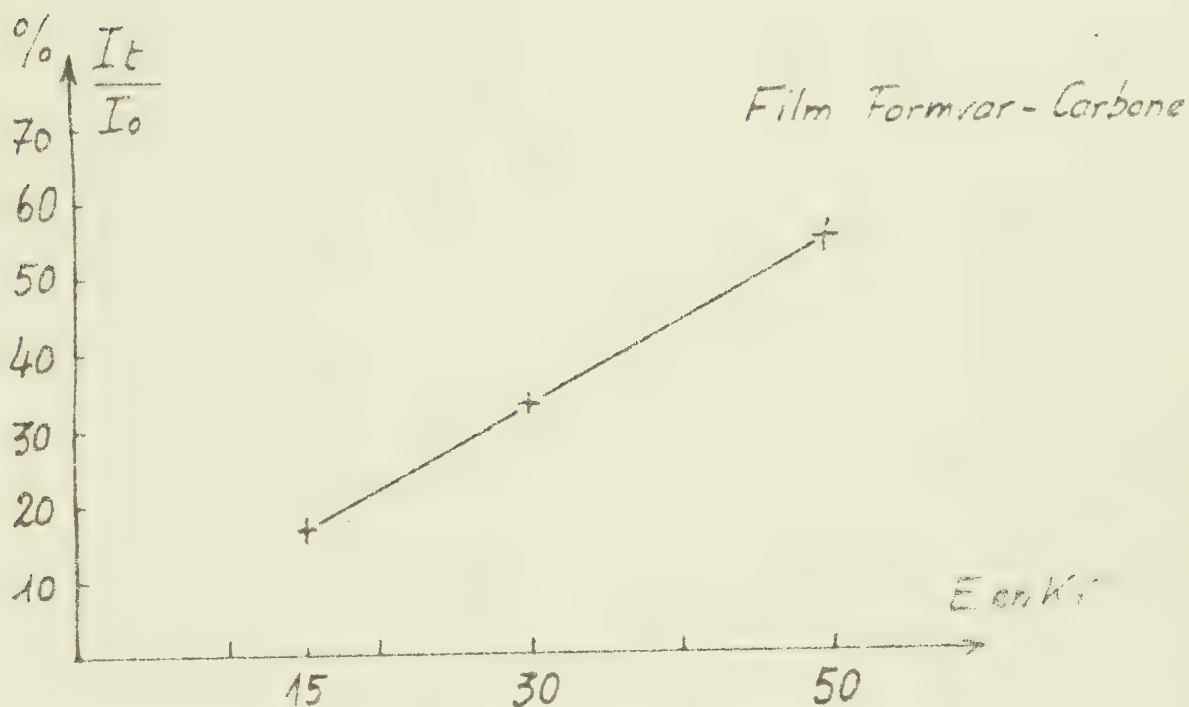
I_0 = faisceau incident sur la préparation

I_{ot} = faisceau direct transmis

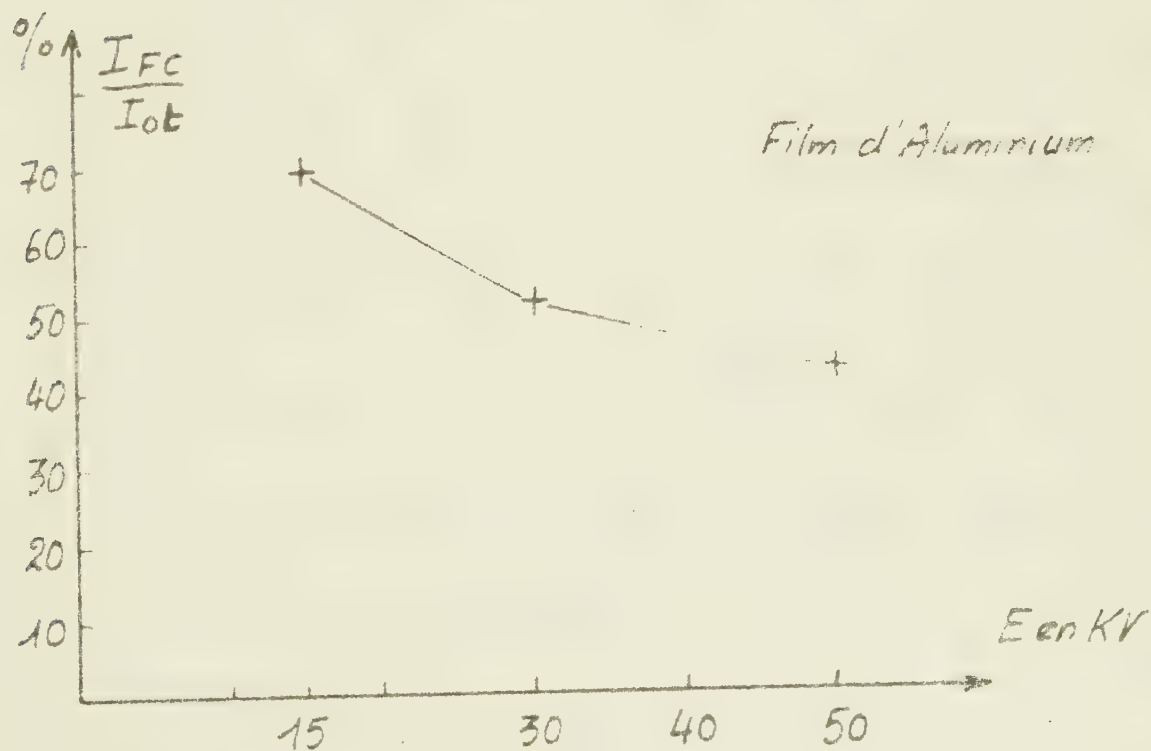
I_{pqr} = somme des intensités dans les différents anneaux de diffraction



a.



b.



I_{Fc} = Intensité diffusée dans le fond continu du diagramme

Nous pouvons mesurer: I_o , I_{ot} et I_{pqr} . (Voir paragraphe 2.1.3)

On peut donc déterminer I_{Fc} .

Il faut encore tenir compte de la diffusion par les films de carbone servant de support, pour cela on a étudié un film de carbone vierge. Les films de formvar-carbone ont une épaisseur de l'ordre de 40 Å.

Sur la figure 42a est représentée la fraction de l'intensité incidente transmise sans perte en fonction de l'énergie des électrons incidents. On constate que la fraction diffusée augmente quand l'énergie des électrons diminue.

L'étude d'une préparation d'aluminium d'une épaisseur de l'ordre de 60 Å a donné la répartition entre fond continu et diffusion élastique représentée sur la figure 42b.

Ces mesures sont très approximatives étant donné que nous ne disposons pas d'un filtre de vitesse, elles donnent néanmoins le sens de variation prévu par la théorie (formule 28); on sait que la section efficace de diffusion inélastique doit augmenter quand l'énergie des électrons diminue.

3.4.4. Détermination des facteurs de diffusion atomiques pour l'aluminium.

Nous avons utilisé les échantillons d'une épaisseur de 60 Å. Il a été vérifié au paragraphe 3.4.2.1. que pour cette préparation compte tenu de la grosseur des grains la théorie cinématique est applicable.

Pour calculer le facteur de diffusion atomique on utilise la relation (20)

$$I_{pqr} = I_0 \lambda^2 \frac{F_{pqr}^2}{522} e^{-2B} \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 t \frac{d_{pqr}}{2} p$$

Dans laquelle :

$$F_{pqr} = \sum f_i e^{2\pi i (hx_i + ky_i + lz_i)}$$

F_{pqr} est le facteur de structure du cristal qui dans le cas considéré est égal. à 4 f

f est le facteur de diffusion atomique

I_{pqr} est l'intensité de la raie (pqr) mesurée à 5 % près

I_0 est l'intensité du faisceau incident déterminée au moyen d'un cylindre de Faraday en tenant compte de la correction des électrons secondaires et de l'absorption de la grille déterminée à 8 % près.

λ est la longueur d'onde associée

Ω_p est le volume de la maille élémentaire donné dans les tables avec une erreur négligeable.

t est l'épaisseur de la préparation mesurée à 15 % près

d_{pqr} est la distance réticulaire

p est le facteur de multiplicité

Il en résulte que les valeurs absolues du facteur de diffusion sont obtenues à 30 % près.

Dans le tableau de la page 85 sont représentés les facteurs

11. The following is a list of the names of the persons who have been

admitted to the membership of the Society since the last meeting.

1. Mr. J. H. Smith, 2. Mr. W. B. Jones, 3. Mr. C. D. Brown,

4. Mr. E. F. White, 5. Mr. G. H. Black, 6. Mr. I. J. Green,

7. Mr. K. L. Grey, 8. Mr. M. N. White, 9. Mr. O. P. Black,

10. Mr. Q. R. Grey, 11. Mr. S. T. White, 12. Mr. U. V. Black,

13. Mr. W. X. Grey, 14. Mr. Y. Z. White, 15. Mr. A. B. Black,

16. Mr. C. D. Grey, 17. Mr. E. F. White, 18. Mr. G. H. Black,

19. Mr. I. J. Grey, 20. Mr. K. L. White, 21. Mr. M. N. Black,

22. Mr. O. P. Grey, 23. Mr. Q. R. White, 24. Mr. S. T. Black,

25. Mr. U. V. Grey, 26. Mr. W. X. White, 27. Mr. Y. Z. Black,

28. Mr. A. B. Grey, 29. Mr. C. D. White, 30. Mr. E. F. Black,

Indices	$\frac{\sin \theta}{\lambda}$	$2B \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2$	$-\frac{2B \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2}{2,3}$	D
111	0,21	0,07	- 0,03	0,93
200	0,25	0,099	- 0,043	0,90
220	0,35	0,19	- 0,083	0,82
311	0,41	0,27	- 0,117	0,76
222	0,43	0,30	- 0,13	0,74

Facteurs de Debye

Indices	$d_{\text{Å}}^{\circ}$	$\sin\theta$	$f \times 10^{-8}$	F_{par}	D	P	$\frac{I_{\text{par}}}{I_0}$
111	2,34	0,214	2,3	9,2	0,93	8	$3,2 \cdot 10^{-2}$
200	2,02	0,248	1,9	7,6	0,9	6	1,4 "
220	1,42	0,352	1,15	4,6	0,82	12	0,66 "
311	1,22	0,41	0,9	3,6	0,76	24	0,64 "
222	1,16	0,43	0,82	3,3	0,74	8	0,16 "
400	1,01	0,495	0,7	2,8	0,67	6	0,07 "

Aluminium $V = 50 \text{ kV}$ 70 Å

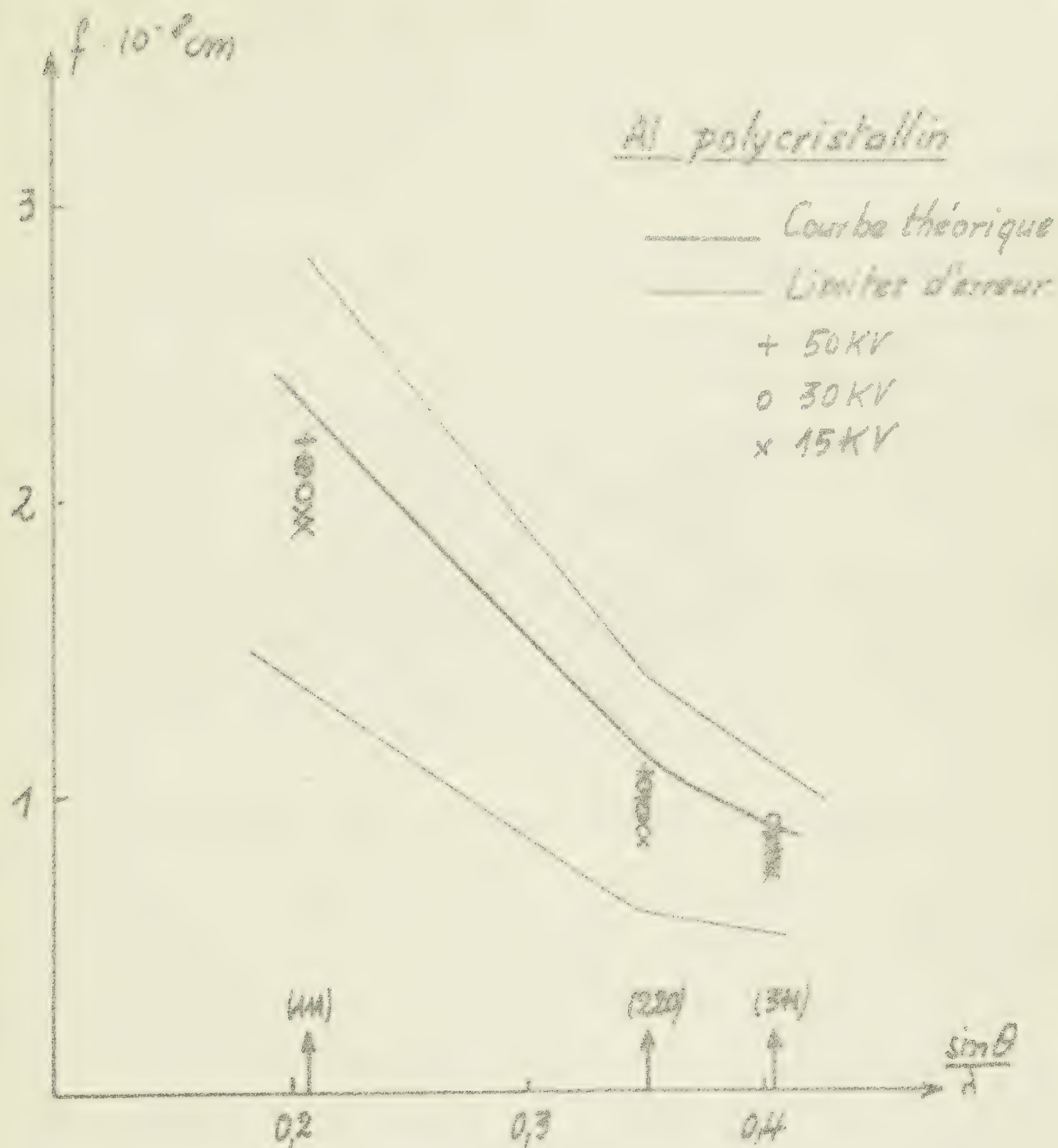


fig: 43

théoriques de $\frac{I_{pgr}}{I_0}$.

Sur la courbe de la figure 43 page 87 sont représentés les points expérimentaux ainsi que les limites d'erreur extrêmes.

Conclusion relative au facteur de diffusion de l'aluminium.

Les films d'aluminium diffractent les électrons en suivant la théorie cinématique si la grosseur des grains est inférieure à 100 Å. La fraction des faisceaux incidents diffusés inélastiquement est importante, de l'ordre de 0,5 à 50 KV, elle est de l'ordre de 0,7 à 15 KV. Les facteurs de diffusion atomiques ont pu être déterminés avec une précision de l'ordre de 30 % et coïncident aux erreurs expérimentales près avec les valeurs théoriques.

3.5. Etude d'échantillons d'aluminium par réflexion.

La détermination des facteurs de diffusion atomiques pour les électrons d'une énergie inférieure à 10 KV ^{ne} peut pas se faire sur des préparations étudiées par transmission. (Voir paragraphe 3.1.1.). Ces mesures ont donc été faites sur des échantillons monocristallins étudiés par réflexion. Comme dans le cas des échantillons étudiés par transmission, il se pose le problème de savoir quelle théorie employer. A priori étant donné que les électrons arrivent sous faible incidence la pénétration doit être faible et la théorie cinématique devrait être applicable.

Si la pénétration des électrons est très faible, leur chemin parcouru dans la matière est pourtant important et peut être de l'ordre de 150 à 200 Å. Pour vérifier si la théorie cinématique est applicable nous avons étudié des préparations polycristallines d'aluminium évaporées sur une plaquette de silice amorphe. La figure 44 représente un tel diagramme.



fig. 44

La comparaison des intensités des différents anneaux de diffraction montre que la théorie cinématique n'est pas applicable. Il est difficile d'obtenir avec des électrons d'une énergie inférieure à 10 KV des diagrammes de diffraction par réflexion sur des échantillons polycristallins. C'est pour cette raison que nous avons utilisé exclusivement des échantillons monocristallins.

Nous avons coupé le cristal selon le plan cristallographique à étudier à l'aide de la tronçonneuse à électro-érosion. L'échantillon ainsi obtenu a été attaqué par un mélange acide ortho-phosphorique, acide nitrique à chaud. Ce traitement

était suffisant pour obtenir un diagramme de diffraction aux électrons rapides. Pour des électrons d'une énergie inférieure à 10 KV il a fallu faire plusieurs recuits sous ultra-vide. Pour l'interprétation des intensités diffractées nous avons utilisé la relation :

$$I_{pqr} = I_0 \frac{\lambda}{2} \frac{F_{pqr}}{S \rho} e^{-B \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2} \frac{d_{pqr}}{\alpha}$$

où α représente l'angle de désorientation du cristal, déterminé en traçant la courbe de l'intensité diffractée en fonction de l'angle de rotation du cristal et en prenant la largeur du pic à mi-hauteur.

La détermination de I_0 est dans ce cas encore plus délicate que pour les préparations polycristallines.

On procède de la façon suivante :

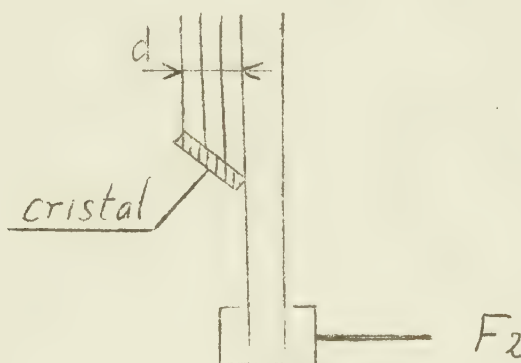


fig. 45

A l'aide de la sonde F_2 on détermine le faisceau I_{0t} , puis à l'aide d'un micromètre on avance le cristal jusqu'à ce qu'il touche le faisceau incident. L'électromètre branché sur le cristal (qui est isolé de la masse) permet de repérer cette position.

On avance alors le cristal de la distance "d" (figure 45). Tous les rayons qui tombent dans ce cas sur le cristal arrivent sur la face diffractante. Un écran E placé en face du cristal permet de capter les électrons diffusés inélastiquement.

46
Sur la figure de la page 92 sont représentés les résultats obtenus comparés à la courbe théorique. On a une diminution du facteur de diffusion avec l'énergie du faisceau incident, mais on retrouve là encore l'ordre de grandeur de la valeur absolue du facteur de diffusion.

3.6. ETUDE DES PREPARATIONS POLYCRISTALLINES D'ARGENT PAR =====

TRANSMISSION. =====

Les échantillons d'argent ont été obtenus par évaporation sous vide. Les vapeurs sont recueillies sur une grille en cuivre recouverte d'un film de formvar carbone.

Nous avons étudié des échantillons d'une épaisseur de l'ordre de 40 Å. Nous avons déterminé par une méthode comparable à celle utilisée précédemment dans le cas de l'aluminium, d'abord le rapport $\frac{I_{Fc}}{I_{ot}}$. Les valeurs obtenues sont représentées sur la courbe figure 47.

Les valeurs des facteurs de diffusion atomique déterminées expérimentalement sont représentées sur la courbe figure 48. Les dispersions sont du même ordre de grandeur que dans le cas de l'aluminium.

Conclusion sur l'étude des préparations d'Argent.

On constate que le rapport $\frac{I_{Fc}}{I_{ot}}$ a augmenté beaucoup

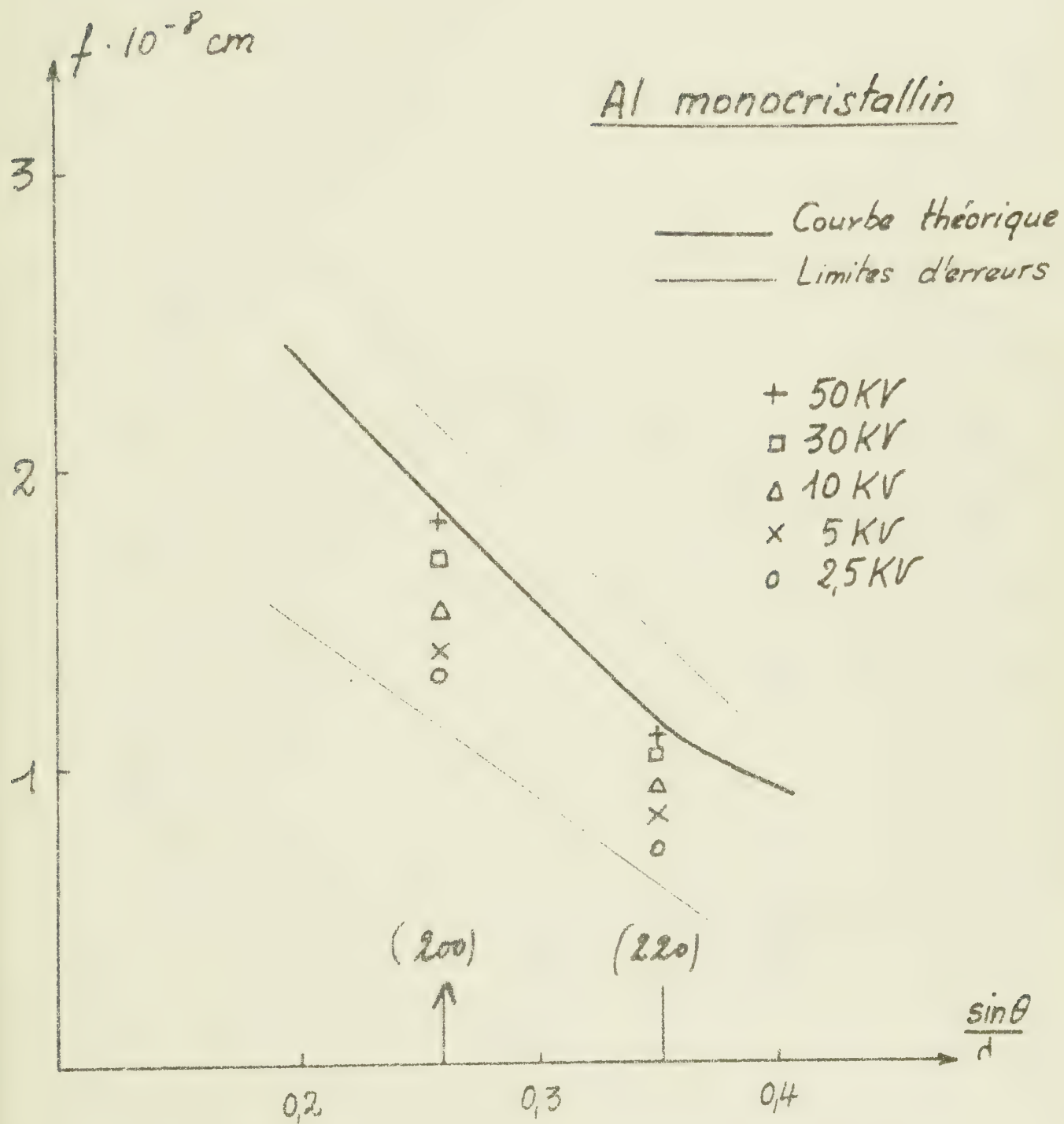


fig. 46

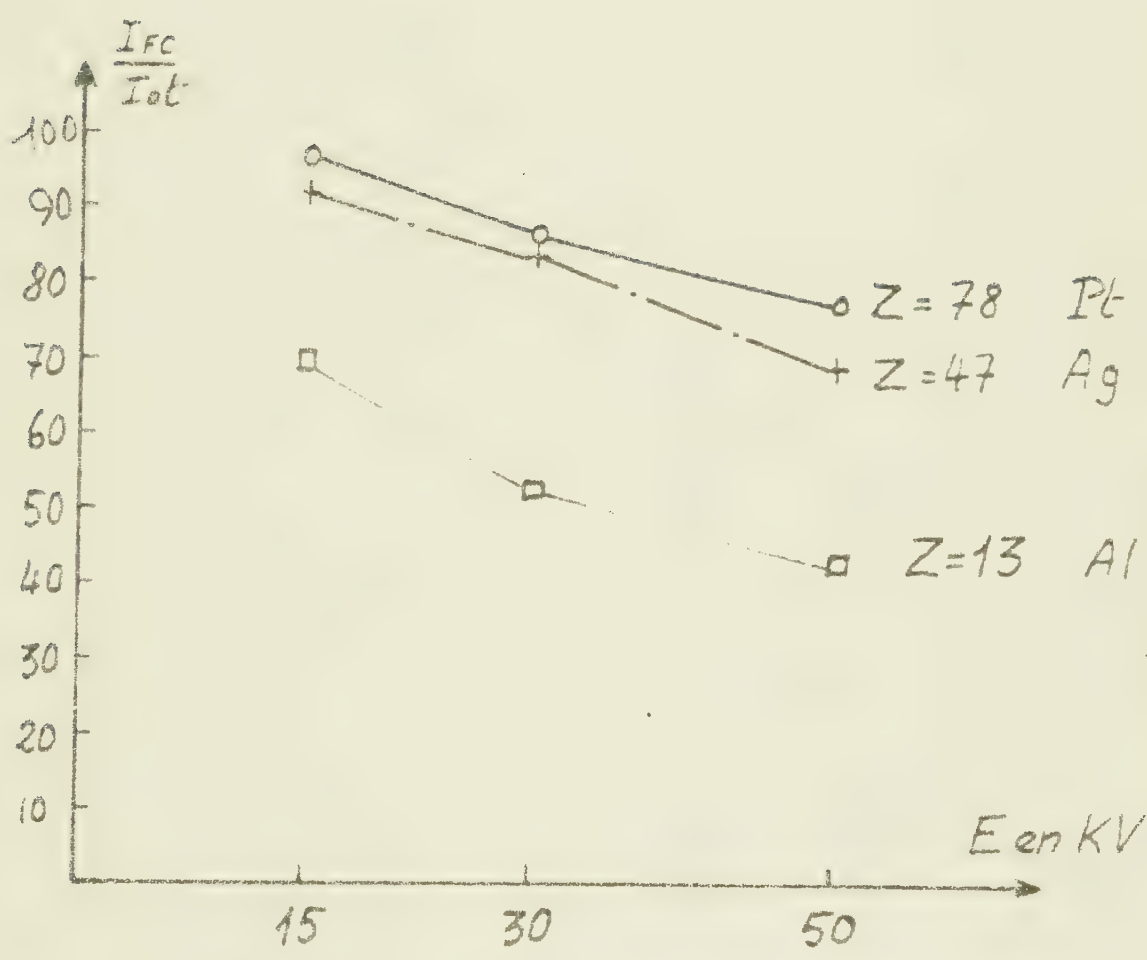


fig 47

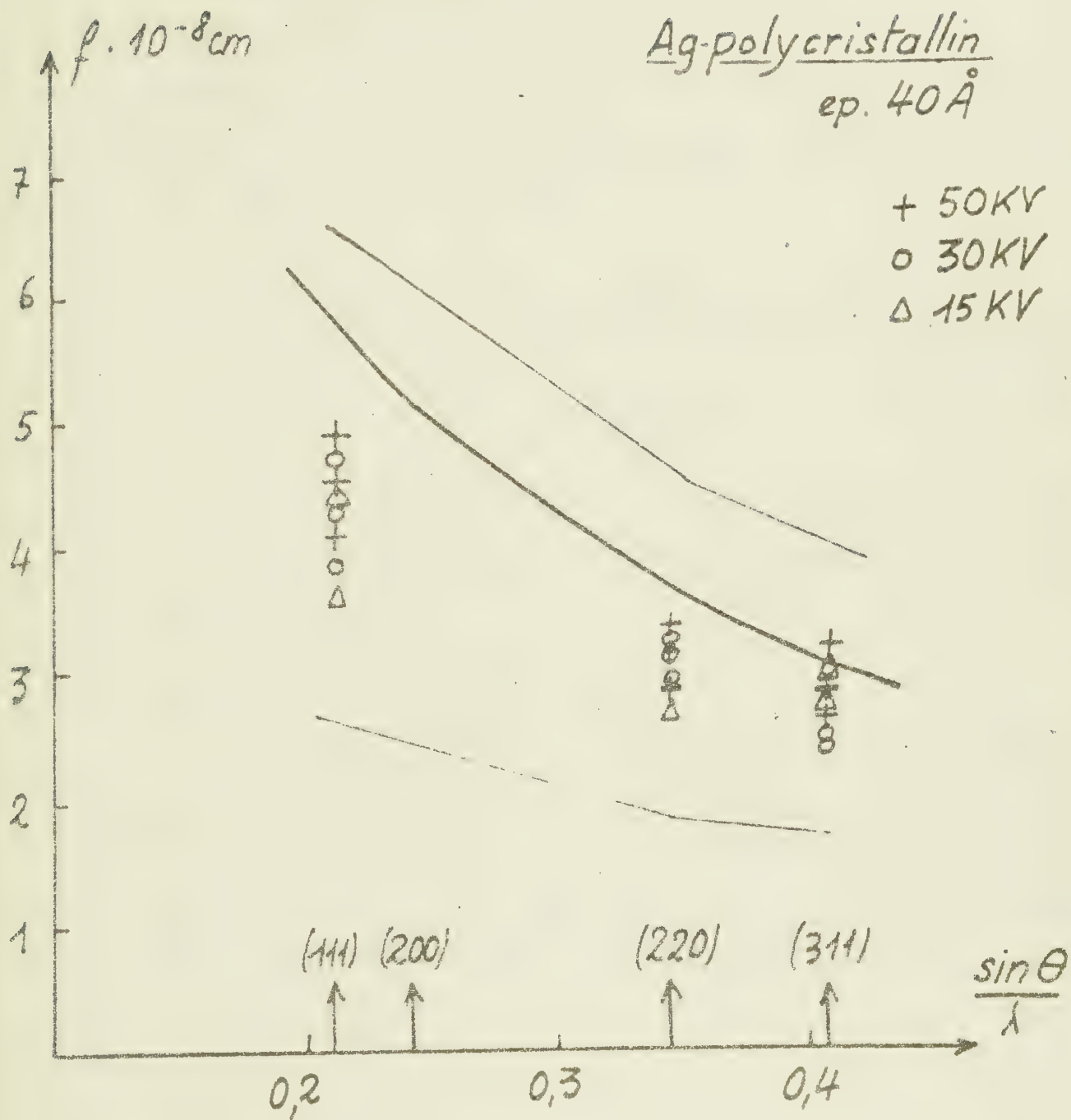


fig. 48

par rapport à celui déterminé dans le cas de l'aluminium. On retrouve à 30 % près l'ordre de grandeur du facteur de diffusion théorique. La notion de facteur de diffusion garde là encore sa signification. Nous n'avons pas disposé d'un cristal unique d'Argent et par conséquent sur ce corps aucune mesure par réflexion n'a été faite.

3.7. ETUDE DES PREPARATIONS POLYCRISTALLINES DE PLATINE PAR

TRANSMISSION.

Les échantillons de Platine ont été obtenus par évaporation sous vide. Nous avons étudié des préparations d'épaisseurs différentes :

Préparation d'une épaisseur de $20 \text{ \AA}$.

La théorie cinématique est encore applicable dans ce cas. Les valeurs des facteurs de diffusion relevées expérimentalement sont représentées sur la figure 49. La dispersion est relativement importante mais on retrouve à 30 % la valeur théorique du facteur de diffusion.

3.8. ETUDE DE PREPARATIONS DE PLATINE MONOCRISTALLINES

=====

Les échantillons sont coupé dans la masse d'un cristal unique. Nous avons étudié la face (100) et la méthode expérimentale était la même que celle utilisée dans le cas de l'aluminium. Nous avons d'abord vérifié en comparant les valeurs relatives des facteurs de diffusion expérimentales et théoriques si la théorie dynamique était bien à utiliser dans ce cas. Les valeurs expérimentales des facteurs de diffusion atomique sont comparées aux valeurs théoriques sur la figure 50. On constate là encore que l'ordre de grandeur du facteur théorique est retrouvé à 2,5 KV, sur la figure 48 sont comparés les rapports $\frac{I_{Fc}}{I_{ot}}$ pour les trois corps étudiés, on constate que la fraction du faisceau primaire diffusé dans le fond continu augmente avec Z et avec la longueur d'onde des électrons incidents.

C O N C L U S I O N.

L'étude des intensités diffractées par l'Aluminium, l'Argent et le Platine a permis de retrouver à 30 % les valeurs théoriques des facteurs de diffusion atomique entre 50 et 2,5 KV. Nous avons aussi pu montrer que la notion de facteur de diffusion garde une signification même à 2,5 KV. Nous avons pu montrer également l'augmentation de la diffusion inélastique (fond continu) avec la longueur d'onde.

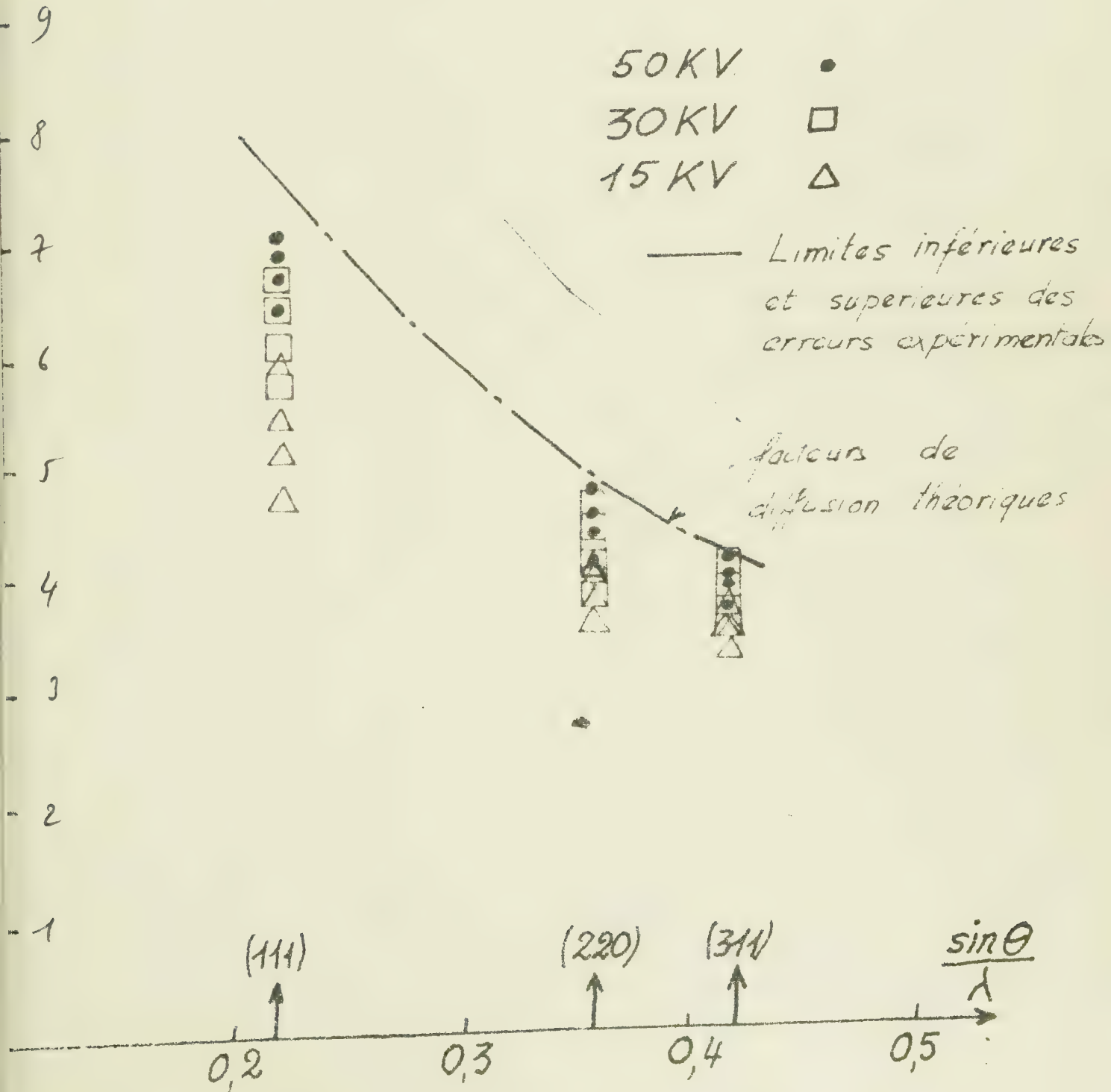
$f \times 10^{-8}$ Pt: polycristallin

fig 49

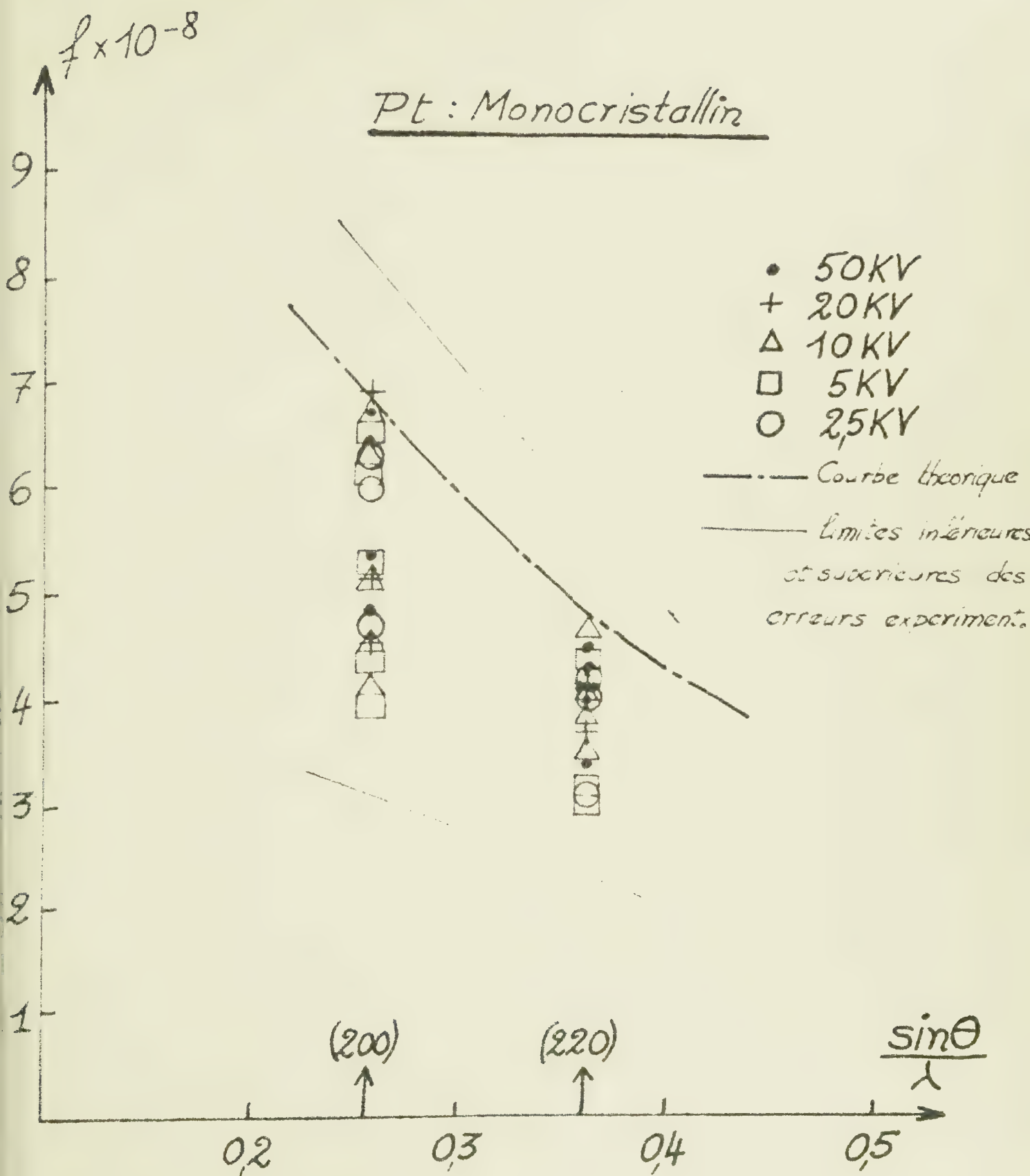


fig. 50

Tableau N° 1

V en volts	λ en Å	$\beta = \frac{v}{c}$ $\times 10^{-2}$	v en m/s $\times 10^6$	H. r gauss.cm
10	3,878	0,62	1,87	10,6
20	2,742	0,88	2,65	15
30	2,238	1,08	3,24	18,4
40	1,939	1,25	3,75	21,3
50	1,734	1,39	4,17	23,8
75	1,416	1,71	5,13	29,2
100	1,226	1,97	5,91	33,7
150	1,001	2,42	7,26	41,3
200	0,867	2,79	8,37	47,6
250	0,775	3,12	9,36	53,3
300	0,707	3,42	10,26	58,4
400	0,613	3,95	11,85	67,4
500	0,548	4,42	13,26	75,4
750	0,447	5,41	16,23	92,3
1000	0,387	6,24	18,72	106,6
2500	0,244	9,85	29,55	168,8
5000	0,173	13,88	41,64	239,0
7500	0,141	16,94	50,82	293,1
10000	0,122	19,49	59,47	338,8
15000	0,099	23,71	71,13	416,0
30000	0,069	32,83	98,49	592,5
40000	0,060	37,40	112,20	687,4
50000	0,053	41,26	123,78	772,2
75000	0,043	48,94	146,82	956,7
100000	0,037	54,82	164,46	1117,2

$\beta = \frac{v}{c}$	v en m/s $\times 10^6$	V en volts	$\frac{dV}{dz}$ en $V \cdot cm^{-1}$ $\times 10^5$
0,1	30	2574	10580
0,2	60	10536	1058
0,3	90	24672	345
0,4	120	46545	184
0,5	150	79049	92
0,6	180	127746	32,64

R E S U M E =====

Dans le présent travail j'ai étudié les intensités électroniques diffractées par les cristaux d'aluminium, d'argent et de platine dans une gamme d'énergie allant de 2,5 KV à 50 KV. Cela m'a conduit à réaliser différents appareils : diffracteurs d'électrons, dispositifs de mesure à cylindre de Faraday, tronçonneuse à électro-érosion.

J'ai utilisé entre 15 KV et 50 KV des préparations polycristallines sous forme de films minces qui ont été étudiés par transmission. Entre 2,5 KV et 10 KV j'ai étudié la diffraction sur des cristaux uniques. A partir des mesures absolues des intensités diffractées j'ai pu montrer que la notion de facteur de diffusion garde un sens même pour les électrons de 2,5 KV.

Les facteurs de diffusion ont pu être déterminés à 30 % près. L'étude des intensités diffusées inélastiquement a permis de chiffrer les coefficients de diffusion inélastique. La proportion des électrons diffusés inélastiquement augmente avec le numéro atomique de l'élément et est inversement proportionnelle à l'énergie des électrons.

Cette étude a été limitée à une énergie de 2,5 KV et doit être poursuivie par la suite jusqu'aux énergies de l'ordre de 100 Volts.

BIBLIOGRAPHIE

1. DAVISSON et KUNSMANN. - Phys.Rev., 22, 1923, 243.
2. DE BROGLIE. - Phil.Mag., 47, 1924, 446.
3. ELSASSER. - Naturwiss., 13, 1925, 711.
4. DAVISSON et GERMER. - Phys. Rev., 30, 1927, 705.
Nature, 119, 1927, 555.
5. THOMSON et REID. - Nature, 119, 1927, 890.
6. BETHE. - Ann.Phys., 87, 1928, 55.
7. LIPOLD. - Ann.Phys., 54, 1917, 514.
8. HENNEBERG. - Z.Phys., 83, 1933, 555.
9. MORSE. - Phys.Zeitsch., 33, 1932, 443.
10. COWLEY et MOODY. - Acta Cryst., 10, 1957, 609.
11. BLACKMANN. - Proc.Roy.Soc., A 173, 68, 1939.
12. BOERSCH, JASCHKE et REITH. - Z.Phys., 181, 1965, 436.
13. BODO v. BORRIES. - Z.Naturforschung., 4a, 1949, 51.
14. LENZ. - Z.Naturforschung., 9a,
15. FUJIMOTO. - J.Phys.Soc.Jap., 14, 1959, 1558.
16. HOLIERL. - Ann.Phys., 35, 1939, 272.
- 17.
18. KAINUMA. - Acta Cryst., 8, 1955, 247.
19. TAKAGI. - J. Phys., Soc.Jap., 13, 1958, 278.
20. YOSHIOKA and KAINUMA. - J. Phys.Soc.Jap., 17, 1962, 134.
21. YOSHIOKA. - J. Phys.Soc.Jap., 12, 1957, 618.
22. HORSTMANN, MEYER u. RAETHER. - Z.Phys., 154, 1959, 633.
23. ALAM, BLACKMANN and PASHLEY. - Proc.Roy.Soc.London, 221A, 1953, 224.
24. BRUNGER u. MENZ. - Zeitsher.f. Phys., 184, 1965, 271.
25. KAMBE. - J.Phys.Soc.Japan., 12, 1957, 13.
26. ONTSUKI. - J.Phys.Soc.Japan., 24, 1968, 1116.
27. MAC RAE. - J.Chem.Phys., 45, 1966, 3258.
28. G.P. THOMSON. - Proc.Roy.Soc., 125, 1929, 352.
29. MARK u. WIERL. - Z.f.Phys., 80, 1930, 741.
30. ORNSTEIN, BRINKMANN, HAUER and TOL. - Physica, 5, 1938, 693.

31. TOL and ORNSTEIN. - Physica., 7, 1940, 685.
32. HORSTMANN and MEYER. - Acta Cryst., 15,
33. KUWABARA. - J.Phys.Soc.Japan., 12, 1957, 637.
34. THOMSON and COCHRANE. - Theory and Practice of Electron Diffraction. Mac Millan and Co. Ltd.London, 1939.
35. Max von LAUE. - Materiewellen und ihre Interferenzen. - Akademische Verlagsgesellschaft, Leipzig, 1944.
36. E. BAUER. - Elektronenbeugung Theorie, Praxis und industrielle Anwendungen. Verlag Moderne Industrie, München 2.
37. PINSKER. - Electron Diffraction. - Butterworths Scientific Publications London 1953.
38. S. FLUGGE. - Handbuch der Physik. Vol.32 Strukturforschung. Springer Verlag Berlin, 1957.
39. MOTT and MASSEY. - The Theory of Atomic collisions. - At the Clarendon Press, Oxford, 1965.
40. HEIDENREICH. - Fundamentals of transmission electron microscopy. Interscience publishers John Wiley and Sons, New-York, 1964.
41. VAINSHTEIN. - Structure Analysis by Electron Diffraction. Pergamon Press, London. 1964.
42. SAADA. - Microscopie électronique des lames minces cristallines. Masson & Cie., 1966.
43. HIRSCH et all. - Electron Microscopy of thin Crystals. - Butterworths London.
44. TRILLAT. - Découverte de la matière. - Sciences d'aujourd'hui. Edit. Albin Michel.
45. TRILLAT. - La diffraction des électrons et ses applications.- Actualités scientifiques Ed.Herrmann, Paris, 1935.
46. R.W. JAMES. - The Optical principles of the diffraction of X-Rays. - G.Bell and Sons, Ltd., London, 1965.
47. COMPTON & ALLISON. - X-Rays in Theory and experiment.- D.van Nostrand Co. Inc. New-York, 1954.
48. B. GAUTHE. - Les pertes d'énergies caractéristiques des électrons dans les solides. - Gauthier-Villars, Paris, 1968.
49. YOSHIOKA. - J.Phys.Soc.Japan., 9, 1954, 636.
50. HONJO and MIHAMA. - J.Phys.Soc.Japan., 9, 1954, 184.
51. BORMANN. - Phys.Zeitschr., 42, 1941, 157.
52. LENARD. - Handbuch der Experimental Physik, vol. 14, p.120.
53. International Tables for X-Rays Cryst., T.3, 1962. The Kynoch Press Birmingham.
54. LAVAL. - Comptes Rendus Ac.Sciences, Paris, 208, 1939, 1446.

56. HALL and HIRSCH. - Proc.Roy.Soc., A 286, 1965, 158.
57. HORSTMANN, MEYER. - Z.f.Physik, 164, 1961, 21.
58. HOWIE. - Proc.Roy.Soc. London, 271, 1963, 268.
59. YOSHIOKA and KAINUMA. - J.Phys.Soc.Japan, B 17, 1962, 134.
60. WATANABE. - J.Phys.Soc.Japan, 15, 1960, 2368.
61. HARTL and RAETHER. - Z.f.Phys., 161, 1961, 238.
62. GUINIER. - Théorie et Technique de la Radiocristallographie.
Dunod, 1964.
63. MOLIERE. - Ann.Phys. Leipzig., 34, 1939, 461.
65. OHTSUKI. - Phys.Let., 27A, 1968, 65.
66. P. MICHEL. - Thèse Docteur-Ingénieur, Strasbourg, 1953.
Ann.de Phys., 13, n° 1, 1956, p. 719.
67. BALTZINGER et BURGGRAF. - J.Microscopie, 4, 1965, 265.
68. BURGGRAF et GOLDSZTAUB. - J.Microscopie, 1, 1962, 411.
69. MOSSER et BURGGRAF. - Rev.Phys.Appl., 2, 1967, 57.
70. BURGGRAF et GOLDSZTAUB. - Comptes Rendus Ac.Sciences, Paris,
262, 1966, 1118.
71. BURGGRAF et GOLDSZTAUB. - J.Microscopie, 2, 1963, 573.
72. BURGGRAF et GOLDSZTAUB. - Brevet C.N.R.S., n° 8152.
73. BOND. - J.Scient.Instrum., 38, 1961, 63.
74. S.FLUGGE. - Handbuch der Physik, vol.34, Korpuskeln und Strahlung in Materie II. Springer Verlag, Berlin, 1958.
75. TRILLAT. - C.R.Acad.Sciences, 209, 1939, 201.
76. GOLDSZTAUB et LANG. - C.R.Acad.Sciences, Paris, 258, 1964, 117.
77. BURGGRAF et GOLDSZTAUB. - C.R.Acad.Sciences, Paris, 264, 1967,
206.
78. SCOTT, LAUCLAN et SENNETT. - J.Appl.Phys., 21, 843, 1950.

Strasbourg, le 8 Avril 1969

Le Président du Jury,

S. GOLDSZTAUF.

VU et Permis d'imprimer

Strasbourg, le 25 Avril 1969

Le Doyen,

J.H. VIVIEN.

